



Contribution à l'évaluation biogéochimique des impacts liés à l'exploitation géothermique des aquifères superficiels : Expérimentations et simulations à l'échelle d'un pilote et d'installations réelles

Frédéric Garnier

► To cite this version:

Frédéric Garnier. Contribution à l'évaluation biogéochimique des impacts liés à l'exploitation géothermique des aquifères superficiels : Expérimentations et simulations à l'échelle d'un pilote et d'installations réelles. Interfaces continentales, environnement. Université d'Orléans, 2012. Français. NNT : . tel-00910204

HAL Id: tel-00910204

<https://theses.hal.science/tel-00910204>

Submitted on 2 Dec 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES ET TECHNOLOGIES

Bureau de Recherche Géologique et Minière – Institut des Sciences de la
Terre d'Orléans

THÈSE présentée par : **Frédéric GARNIER**

Soutenue le 25/10/2012

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université d'Orléans**

Discipline : Sciences de l'Univers

**Contribution à l'évaluation biogéochimique des impacts
liés à l'exploitation géothermique des aquifères
superficiels : Expérimentations et simulations à
l'échelle d'un pilote et d'installations réelles**

THÈSE co-dirigée par :

Mikaël MOTELICA
Ioannis IGNATIADIS

Professeur, Université d'Orléans
Dr d'Etat ès Sciences Physiques, IR Senior (BRGM)

RAPPORTEURS :

Frédéric HUNEAU
Bernard OLLIVIER

Professeur, Université de Corse
Directeur de recherche, IRD

JURY :

Bernard OLLIVIER
Luc AQUILINA
Jean FRENEY
Frédéric HUNEAU
Ioannis IGNATIADIS
Hervé LESUEUR
Mikaël MOTELICA

Directeur de recherche, IRD, Président du Jury
Professeur, Université de Rennes 1
Professeur, Université Claude Bernard Lyon 1
Professeur, Université de Corse
Dr d'Etat ès Sciences Physiques, IR Senior (BRGM)
Dr en Physique, IR BRGM
Professeur, Université d'Orléans

Remerciements

Au terme d'un périple de près de 4 années, voici venu le moment de remercier toutes les personnes qui ont, d'une manière ou d'une autre, contribué à l'aboutissement de ce travail.

Je souhaite remercier, en tout premier lieu, les initiateurs de ce projet interdisciplinaires, en particulier Hervé Lesueur, Ioannis Ignatiadis et Mikael Motelica. Merci d'avoir dessiné les contours de ce programme de recherche si passionnant, d'avoir cru en moi et de m'avoir octroyé des moyens expérimentaux conséquents.

Je tiens également à remercier les responsables des différents laboratoires, services ou département au sein desquels j'ai pu évoluer : Fabrice Boissier, Alain Desplan, Romain Vernier, Bernard Sanjuan, Hervé Gaboriau, Dominique Morin, Stéphane Roy et Francis Garrido.

J'adresse mes plus sincères remerciements aux membres du jury qui m'ont fait l'honneur de juger mes travaux de thèse et qui sont parvenus à être tous présents à ma soutenance malgré les petits désagréments occasionnés par une journée de grève à la Snctf !

Je tiens à remercier l'ensemble des stagiaires avec qui j'ai eu le plaisir de travailler : Véronique Lepicier, Junior Obame Nguema, Karine Michel, Matthieu Despres, Pol-Erwan Michel et Laura Chevalet.

J'adresse mes plus vifs remerciements à mon principal encadrant de thèse, Ioannis Ignatiadis, pour m'avoir transmis son expérience et ses connaissances, pour son soutien sans faille, notamment lors des moments difficiles, et pour l'attention dont il a toujours fait preuve à mon égard. En un mot, merci Docteur !

J'exprime toute ma reconnaissance à l'équipe « bio » du BRGM pour m'avoir soutenu tout au long de l'aventure. Je remercie en particulier Fabienne Battaglia, Catherine Jouliau et Jennifer Harris-Hellal pour leurs contributions respectives, leurs suggestions pertinentes et leurs relectures attentives, qui ont été cruciales lors du rush final.

Un grand merci à toute l'équipe de techniciens du BRGM-Orléans : Steph, pour m'avoir sauvé la vie en biomol, Pierrot, pour ton appui technique pour la conception du pilote, Dominique, pour tes analyses en spectro de dernière minute et les autres, Tonio, Mickaël, Marco, Laurence, Hafida, Pascal pour votre bonne humeur et votre sympathie ! Je tiens également à exprimer ma profonde gratitude à toute l'équipe de techniciens de terrain (MTE), Michel, Gillou et Flo, pour l'aide précieuse que vous m'avez apportée tout au long de cette thèse, principalement en ce qui concerne les problématiques de prélèvements ! Grâce à vous, j'ai pu acquérir une véritable passion pour les études de terrain.

Merci à toutes les personnes que j'ai eu l'occasion de côtoyer lors des différentes campagnes de terrain, notamment Joël, Jean-Louis, Stéphane et François, qui ont rendu mes missions tellement plus agréables ! Merci également à toute l'équipe du Ctifl-Balandran pour leur collaboration et leur sympathie.

Je remercie également toute l'équipe géothermie du BRGM, en particulier Sophie Bezelgues et Pierre Durst pour les actions menées au niveau du projet ImPAC, Mikael Philippe, Charles Maragna, Hervé Lesueur et Alexandre Yrain, pour les manips au niveau de la plateforme géothermique.

J'exprime ma profonde gratitude à toutes les personnes que j'ai sollicitées pour obtenir des infos, qui m'ont apporté leur aide et fait partager leurs compétences pour la réalisation de ce travail. Je pense notamment à Sandra Lanini, Marc Parmentier, Marie Pettenati, Delphine Bruyère, ...

J'adresse un remerciement collectif à l'ensemble des personnes du bâtiment G1-G6 que j'ai côtoyées au quotidien et qui n'ont pas été préalablement citées, pour avoir rendu l'ambiance plaisante. Je n'oublie pas les autres stagiaires, cdd ou post-docs, avec qui j'ai pu passer d'agréables moments : Aude, Rémi, Audrey, Laure, Anne ... Petite mention particulière pour mon collègue de bureau et acolyte de choc, la Duprazette, avec lequel j'ai pu tisser de fort liens d'amitié. Merci pour ton soutien inconditionnel, pour nos discussions enrichissantes, nos bons moments de délire autour d'une tasse de café ainsi que pour tes relectures de dernières minutes.

Spéciale dédicace aux autres thésards BRGM qui m'ont accompagné au cours de l'aventure : Anto Jeb, Paulette, Yanessa, Hanane, Mickaël, ...

Enfin, un grand merci tout spécial à ma famille, mes parents qui m'ont permis de réaliser de si longues études et qui m'ont encouragé tout au long de ce travail.

Sommaire

INTRODUCTION

CHAPITRE I : REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

1. FACTEURS INFLUENÇANT LE REGIME THERMIQUE DES NAPPES D'EAUX SUPERFICIELLES : COMPOSANTES NATURELLES ET FORÇAGE EXTRINSEQUE.....	6
1.1 COMPOSANTES NATURELLES.....	6
1.2 COMPOSANTES ANTHROPIQUES	8
1.2.1 Effets indirects	9
1.2.2 Effets directs	10
2. ETAT DES CONNAISSANCES SUR L'INFLUENCE DE LA TEMPERATURE SUR LA QUALITE DES EAUX SOUTERRAINES	13
2.1 CONSIDERATIONS THEORIQUES	13
2.1.1 Influence de la température sur les réactions chimiques	13
2.1.2 Influence de la température sur les microorganismes	21
2.2 SYNTHÈSE DES PRINCIPAUX TRAVAUX DE RECHERCHES.....	23
2.2.1 Incidence au niveau de la productivité des ouvrages	23
2.2.2 Influence au niveau des communautés microbiennes	31
2.2.3 Conclusions	33

CHAPITRE II : MATERIELS ET METHODES

1. CONCEPTION D'UN DISPOSITIF EXPERIMENTAL DE PERCOLATION EN COLONNES (PILOTE BIOTHERMEX)..	38
1.1 CONTEXTE ET ENJEUX.....	38
1.2 BASE DE REFLEXIONS.....	39
1.2.1 Sélection des matériaux (colonne et circuit).....	39
1.2.2 Dimensionnement des colonnes	41
1.2.3 Contrôle de la température	41
1.3 PRESENTATION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL	42
1.3.1 Principe de l'essai et démarche	42
1.3.2 Eléments du dispositif sélectionné.....	44
1.4 CONDUITE DES ESSAIS	48
1.4.1 Considérations générales	48
1.4.2 Garnissage des colonnes	49
1.4.3 Saturation de la colonne et mise à l'équilibre	50
1.4.4 Caractérisation du régime hydrodynamique	50
2. PRELEVEMENTS ET MESURES IN SITU	52
2.1 CONSIDERATION GENERALES	52
2.1.1 Représentativité physico-chimique des échantillons d'eau	52
2.1.2 Représentativité microbiologique des échantillons d'eau	54
2.1.3 Synthèse	54
2.2 APPROCHE METHODOLOGIQUE	55

2.2.1 Mesures diagaphiques préalables.....	55
2.2.2 Ouvrages non équipés de dispositifs de pompage	57
2.2.3 Ouvrages avec pompe à demeure	62
2.2.4 Dosage de l'alcalinité in situ	62
3. TECHNIQUES ANALYTIQUES	63
3.1 ANALYSE INORGANIQUE ET ORGANIQUE DES SOLUTIONS AQUEUSES.....	63
3.1.1 Mesure et analyse des paramètres non conservatifs	63
3.1.2 Dosages des espèces conservatives.....	72
3.2 CARACTERISATIONS DES MATERIAUX D'ETUDES	75
3.2.1 Analyse chimique quantitative multiélémentaires	75
3.2.2 Analyse minéralogique	77
3.2.3 Analyse granulométrique	78
3.2.4 Analyse pétrographique	78
3.2.4 Détermination de la capacité d'échange cationique (CEC)	79
3.2.5 Autres déterminations.....	79
3.2.6 Reconstitution de l'assemblage minéralogique par modélisation.....	80
3.3 MICROBIOLOGIE	81
3.3.1 Dénombrement de la biomasse bactérienne.....	81
3.3.2 Détermination de la diversité bactérienne	83
3.3.3 Mesure d'activité.....	84
4. TRAITEMENTS DES RESULTATS	87
4.1 ANALYSES STATISTIQUES	87
4.1.1 Tests non paramétriques.....	87
4.1.2 Analyses multifactorielles.....	88
4.2 MODELISATION HYDROGEOCHIMIQUE.....	89

CHAPITRE III : APPROCHE A L'ECHELLE D'UNE INSTALLATION ISOLEE (BALANDRAN)°

1. CADRE GENERAL DE L'ETUDE.....	92
1.1 PROJET SERRE CAPTEUR D'ENERGIE.....	92
1.2 PRINCIPE DU MODE DE STOCKAGE THERMIQUE ENVISAGE	93
1.2 OBJECTIF DE LA PRESENTE ETUDE.....	94
2. PRESENTATION DU SITE EXPERIMENTAL	94
2.1 DESCRIPTION DE L'INSTALLATION PILOTE	94
2.1.1 Serre capteur	94
2.1.2 Circuit primaire	94
2.1.3 Circuit secondaire	94
2.1.4 Exemple de fonctionnement en mode climatisation	95
2.2 CONFIGURATION DU DISPOSITIF DE SUIVI	96
3. CONTEXTE HYDROGEOLOGIQUE.....	97
3.1 CADRE REGIONAL	97
3.2 CADRE LOCAL	98
3.2.1 Reconnaissance géologique du site	98
3.2.2 Piézométrie au droit du site.....	99
3.2.3 Détermination des caractéristiques hydrodynamiques du site	99

4. CARACTERISATION DES FORMATIONS HOSTES SEDIMENTAIRES	100
4.1 ANALYSES GRANULOMETRIQUES	100
4.2 ANALYSE PETROGRAPHIQUE	101
4.3 ANALYSES CHIMIQUES GLOBALES.....	103
4.4 ANALYSES MINERALOGIQUES.....	104
4.5 MESURE DE LA CAPACITE D'ECHANGE CATIONIQUE (CEC)	104
4.6 RECONSTITUTION QUANTITATIVE DE L'ASSEMBLAGE MINERALOGIQUE	105
5. EVOLUTION THERMIQUE DE L'AQUIFERE	107
5.1 COMPOSANTE NATURELLE : VARIATION SAISONNIERE	107
5.1.1 Mise en évidence	107
5.1.2 Analyse de la relation avec la température extérieure.....	108
5.2 INCIDENCE DE L'INSTALLATION GEOTHERMIQUE.....	111
5.2.1 Mode de fonctionnement de l'installation	111
5.2.2 Suivi des températures au niveau de la nappe	112
6. EVOLUTION DE LA CHIMIE DES EAUX	115
6.1 CAMPAGNES D'ECHANTILLONNAGES	115
6.2 RESULTATS	115
6.2.1 Vérification de la cohérence des analyses	115
6.2.1 Calcul des indices de saturation	116
6.1.3 Potentiel d'oxydo-réduction	120
7. EVOLUTION DES PARAMETRES MICROBIOLOGIQUES	122
7.1 SUIVI DE BIOMASSE BACTERIENNE.....	122
7.1.1 Evolution saisonnière de la quantité de germes totaux	122
7.1.2 Germes d'intérêt sanitaire.....	124
7.2 SUIVI DE LA DIVERSITE BACTERIENNE	124
7.2.1 Distribution spatiale	124
7.2.2 Structuration temporelle	126
7.3 MESURES D'ACTIVITE	128
7.3.1 Activité potentielle de minéralisation de substrats carbonés.....	128
7.3.2 Activité déshydrogénase.....	131
7.3.3 Activité hydrolytique.....	132
8. MODELISATION HYDROGEOCHIMIQUE	133
8.1 HYPOTHESES ET LIMITES DU MODELE EMPLOYE	133
8.2 SIMULATION EN TEMPERATURE SUR LE SYSTEME CHIMIQUE	133
8.2.1 Etat initial	133
8.2.2 Simulation en « système fermé » ($\log p_{CO_2} = -1.59$, $P_{CO_2} = 10^{-1.59} \text{ atm}$)	134
8.2.3 Simulation en système ouvert ($\log P_{CO_2} = -3,5$, $P_{CO_2} = 3,16.10^{-4} \text{ atm}$)	135
9. SYNTHESE	137

CHAPITRE IV : APPROCHE A L'ECHELLE D'UNE INSTALLATION EN ZONE URBANISEE

1. CADRE GENERALE DE L'ETUDE ET ENJEUX	142
1.1 APERÇU DE L'ETAT ACTUEL DE LA RESSOURCE AU NIVEAU DE L'AGGLOMERATION LYONNAISE	142
1.2 CADRE GEOLOGIQUE ET HYDROGEOLOGIQUE	143

1.2.1 Contexte géologique.....	143
1.2.2 Contexte hydrogéologique	145
1.2.3 Projet ImPAC-Lyon.....	147
2. DESCRIPTION DU SITE ET DU DISPOSITIF DE SURVEILLANCE	148
2.1 DOUBLET GEOTHERMIQUE	148
2.2 DISPOSITIF DE SURVEILLANCE.....	148
3. CARACTERISATION DES FORMATIONS HOTES SEDIMENTAIRES.....	150
3.1 ANALYSES GRANULOMETRIQUES	150
3.2 ANALYSES PETROGRAPHIQUES	150
3.3 ANALYSES MINERALOGIQUE	152
3.3 ANALYSES CHIMIQUES GLOBALES.....	152
3.4 MESURE DE LA CEC.....	153
3.5 RECONSTITUTION DE L'ASSEMBLAGE MINERALOGIQUE.....	154
4. EVOLUTION THERMIQUE DE L'AQUIFERE	155
4.1 COMPOSANTE NATURELLE : VARIATION SAISONNIERE	155
4.1.1 Mise en évidence	155
4.1.1 Analyse de la relation avec la température extérieure.....	155
4.2 INCIDENCE DE L'INSTALLATION GEOTHERMIQUE.....	157
4.2.1 Doublet d'exploitation.....	157
4.2.2 Piézomètres de suivi	159
5. EVOLUTION DES PARAMETRES PHYSICO-CHIMIQUES.....	161
5.1 PROGRAMME D'ECHANTILLONNAGE	161
5.2 CARACTERISATION DU PROFIL HYDROGEOCHIMIQUE DES EAUX	161
5.3 EVOLUTION DES CARACTERISTIQUES DE L'EAU	163
5.3.1 Vérification de la cohérence des analyses	163
5.3.2 Suivi des indices de saturation.....	163
5.3.3 Potentiels d'oxydo-réduction.....	165
5.3.4 Suivi de l'oxygène dissous.....	167
6. EVOLUTION DES PARAMETRES MICROBIOLOGIQUES	169
6.1 SUIVI DE L'EVOLUTION DU NOMBRE DE BACTERIES	169
6.1.1 Évolution saisonnière de la quantité de germes totaux	169
6.1.2 Germes d'intérêt sanitaire.....	172
6.2 SUIVI DE L'EVOLUTION DE L'ACTIVITE BACTERIENNE.....	172
6.3 MINERALISATION DE SUBSTRATS CARBONES	174
6.4 SUIVI DE LA DIVERSITE BACTERIENNE	176
6.4.1 Évolution de la structure des communautés	177
6.4.2 Evolution de la biodiversité	180
6.4.3 Analyse des correspondances.....	182
7. MODELISATION DU TRANSPORT REACTIF.....	184
7.1 METHODOLOGIES ET HYPOTHESES	185
7.2 RESULTATS	186
8. CONCLUSIONS	187

CHAPITRE V : APPROCHE A L'ECHELLE D'UNE SONDE GEOTHERMIQUE VERTICALE

1. DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL.....	192
1.1 DESCRIPTION DES ECHANGEURS VERTICAUX.....	192
1.2 DISPOSITIF DE REGULATION DES PUISSANCES THERMIQUE ECHANGEES	192
1.3 MESURE DU CHAMP DE TEMPERATURE DANS LE SOUS-SOL	194
1.3.1 Principe de la mesure	195
1.3.2 Mise en œuvre de l'instrumentation	196
2. CARACTERISATION DU CONTEXTE HYDROGEOLOGIQUE	197
2.1 CADRE GEOLOGIQUE ET HYDROGEOLOGIQUE REGIONAL	197
2.2 CONTEXTE GEOLOGIQUE ET HYDROGEOLOGIQUE LOCAL	199
2.2.1 Cadre géologique.....	199
2.2.2 Hydrogéologie	201
3. CARACTERISATIONS MINERALOGIQUES ET HYDROGEOCHIMIQUES	203
3.1 CARACTERISATION DE L'ASSEMBLAGE MINERALOGIQUE DES SEDIMENTS	203
3.1.1 Analyses chimiques globales	203
3.1.2 Analyses minéralogiques.....	204
3.1.3 Reconstitution quantitative de l'assemblage minéralogique	205
3.2 HYDROGEOCHIMIE DU SITE DE LA PLATEFORME GEOTHERMIQUE.....	207
3.2.1 Diagraphies des forages P1 et P3.....	207
3.2.2 Analyses chimiques et géochimiques des eaux	209
3.2.3 Conclusions.....	212
4. MISE EN ŒUVRE D'UN ESSAI DE STOCKAGE DE CHALEUR SENSIBLE	213
3.1 METHODOLOGIE.....	213
3.1.1 Paramétrisation thermodynamique	213
3.1.2 Dispositif de prélèvement.....	214
3.2 RESULTATS	216
3.2.1 Evolution thermique	216
3.2.2 Evolution des paramètres physico-chimiques.....	221
3.2.3 Evolution des paramètres microbiologiques	225
5. CONCLUSIONS	226

CHAPITRE VI : EXPERIMENTATIONS A L'ECHELLE DU PILOTE BIOTHERMEX

1. SIMULATIONS A L'ECHELLE DU SITE DE BALANDRAN.....	230
1.1 ESSAIS DE TRAÇAGE	230
1.2 TESTS DE STOCKAGE THERMIQUE.....	232
1.3 ESSAIS EN CONDITION DYNAMIQUE.....	238
1.3.1 Résultats des essais à 28°C.....	238
1.3.2 Résultats des essais à 45°C.....	240
2. SIMULATIONS A L'ECHELLE DU SITE DE LA MAIRIE DU 8^E ARRONDISSEMENT (LYON)	244
2.1 ESSAIS DE TRAÇAGE	244
2.2 ESSAIS EN CONDITION DYNAMIQUE	245
2.2.1 Considérations méthodologiques	245

2.2.2 Essai de percolation à 15°C	246
2.2.3 Essai de percolation à 25°C	252
2.2.4 Essai de percolation à 35°C	254
2.3 CONCLUSIONS	255

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

1. BILAN DES TRAVAUX	260
2. PERSPECTIVES	265

Liste des figures

Figure 1 : Illustration de la distribution des températures de subsurface contrôlée d'une part par le gradient géothermique et d'autre part par les températures de surface (d'après Huang et al., 2008).	7
Figure 2 : Illustration des variations annuelles de température en fonction de la profondeur (d'après Sanner, 2001)	7
Figure 3 : Profil d'un îlot thermique urbain (Source : www.rncan.gc.ca).....	9
Figure 4 : Illustration des deux principaux modes d'exploitation géothermiques des ressources superficielles, i.e les sondes géothermiques (a) et les doublets de forages sur nappe (b) (Source : brochure ELCO, Suisse).....	11
Figure 5 : Représentation des panaches thermiques associés à différents doublets géothermiques exploitant la nappe à des fins de chauffage ou de climatisation au niveau de la ville de Strasbourg (Source : ANTEA)	12
Figure 6 : Variations des constantes d'équilibre pour deux minéraux à solubilité prograde	17
Figure 7 : Variations des constantes d'équilibre pour quatre minéraux à solubilité rétrograde.....	17
Figure 8 : Solubilité de l'oxygène en fonction de la température et de la salinité S (g/L) pour une pression partielle d'oxygène de 0,2 atm (d'après l'algorithme proposé par Benson et Krause, 1984)	18
Figure 9 : Solubilité du dioxyde de carbone en fonction de la température et de la salinité S (g/L) pour une pression partielle de $3.6.10^{-4}$ atm (Stumm et Morgan, 1996).....	18
Figure 10 : Variation du pH de neutralité (concentrations équivalentes en H^+ et OH^-) en fonction de la température pour une eau pure ($I=0$) à 1 atm. (Figure obtenue à l'aide du code de calcul PHREEQC)	19
Figure 11 : Evolution de la solubilité en fonction de la température du Naphtalène (a), du 1,3,5-TCB et du 1,4-DCB (b) (Shiu et al., 1997 ; Perez-Tejeda et al., 1990)	20
Figure 12 : Courbe de croissance des différentes catégories de microorganismes en fonction de la température	22
Figure 13 : Illustration des deux principales localisations des phénomènes de colmatage liées au transport de particules en suspension.	24
Figure 14 : Répartition des espèces carbonatées en solution en système fermé en fonction du pH à 25°C et pour une concentration totale en carbone inorganique dissous de $0,1 \text{ mol.L}^{-1}$ (calcul effectué à partir des valeurs de pKa et des fractions ioniques des différentes espèces, tirées de Stumm et Morgan, 1996).....	27
Figure 15 : Diagramme de Pourbaix (pH versus E_H) des espèces du fer (concentration totale des espèces dissoutes $=10^{-3} \text{ M}$, température = 25°C).	28
Figure 16 : a) Vue générale des colonnes et b) Enceinte climatique de confinement.....	44

Figure 17 : Cellule de percolation confinée dans l'enceinte climatique	45
Figure 18 : Représentation générale du dispositif représenté sous AutoCAD	47
Figure 19 : Vue du dispositif aval ; le sens d'écoulement de fluide sortant de la colonne est indiqué par des flèches rouges.....	48
Figure 20 : Collecteur de fraction réfrigéré.....	48
Figure 21 : Procédure de remplissage des colonnes	49
Figure 22 : Type d'injection adoptée et courbe d'élution associée	52
Figure 23 : Aperçu des sondes multi-paramètres employées.....	56
Figure 24 : Exemple de suivi des 5 paramètres pH, température, conductivité, potentiel redox et oxygène dissous en fonction du volume de puits en cours de purge.	60
Figure 25 : Exemple de piquage greffé sur la colonne d'exhaure	62
Figure 26 : Couples acido-basiques de l'acide phosphorique H_3PO_4	67
Figure 27 : Illustration de l'allure de la fonction de Gran en fonction de la quantité de proton ajoutée.	71
Figure 28 : Formule semi-développée de l'EDTA	73
Figure 29 : « Perle de fusion » issue de la phase de préparation de l'échantillon	76
Figure 30 : Illustration du principe de stockage thermique en aquifère appliqué au chauffage et refroidissement d'une serre (source : Courtois et al., 2008)	93
Figure 31 : Schéma synoptique du dispositif expérimental en mode rafraîchissement	96
Figure 32 : Positionnement du doublet géothermique F1 et F2 et des piézomètres de suivi, SP1, SP2, SP3, SP6 et SP7	97
Figure 33 : Illustration des nappes au sud du Gard (source : http://accs.ens-lyon.fr/SVG/nappessudgard).....	98
Figure 34 : Carte piézométrique (19/12/2011) du site du Ctifl de Balandran	99
Figure 35 : Courbes de distribution granulométrique des échantillons récoltés aux différentes profondeurs.....	101
Figure 36 : Vue en lumière naturelle (a) et en lumière polarisée (b) de grains de grès/quartzite et de calcaire	102
Figure 37 : Vue en lumière naturelle (a) et en lumière polarisée (b) de grains de silex (silice microcristalline).....	102
Figure 38 : Grès/quartzite en lumière polarisée	103
Figure 39 : Reconstitution de l'assemblage minéralogique à partir des différentes analyses de la phase solide.....	106
Figure 40 : Température de la nappe relevée à quatre profondeurs dans le piézomètre SP3 durant l'ensemble de la période d'investigation	107
Figure 41 : Comparaison entre température de la nappe et température extérieure (points SP2 et SP3)	108
Figure 42 : Ajustement de la courbe sinusoïdale par rapport aux données expérimentales	109
Figure 43 : Comparaison du modèle ajusté aux valeurs expérimentales en SP2 et SP3 pour la tranche d'eau superficielle	110
Figure 44 : Comparaison du modèle ajusté aux valeurs expérimentales en SP2 et SP3 pour des niveaux plus profond.....	111
Figure 45 : Piézométrie au puits chaud mettant en évidence le fonctionnement du dispositif en mode climatisation au cours de l'été 2011	112

Figure 46 : Température de la nappe en amont (SP1) et en aval du point chaud (SP2 et SP3) de 2009 à 2012.....	113
Figure 47 : Evolution de la température au piézomètre SP2 à différentes profondeurs du 15/07 au 17/07/2011 en réponse à 2 cycles d'injection d'eau chaude.	114
Figure 48 : Indices de saturation des eaux souterraines vis-à-vis de la calcite (CaCO_3) côté « Chaud » et coté « Froid » en fonction de la valeur du pH.....	117
Figure 49 : Indices de saturation des eaux souterraines vis-à-vis de la dolomite ($\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$) côté « Chaud » et côté « Froid » en fonction de la valeur du pH.....	117
Figure 50 : Indices de saturation des eaux souterraines vis-à-vis de la calcite (CaCO_3) coté « Chaud » et coté « Froid » en fonction des températures de prélèvement.....	118
Figure 51 : Indices de saturation des eaux souterraines vis-à-vis de la dolomite ($\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$) côté « Chaud » et côté « Froid » en fonction des températures de prélèvement.....	118
Figure 52 : Indices de saturation des eaux prélevées vis-à-vis des formes minérales siliceuses, cristallines ou amorphe.	119
Figure 53 : Diagramme de Pourbaix simplifié, $p_e=f(\text{pH})$, des principales espèces azotées (concentration totale en espèce dissoute : $c=10^{-3}$ M ; température = 25 °C ; exclusion du N_2) et représentation des points de prélèvements ainsi que des potentiels redox calculés des couples $\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}$ et $\text{NO}_3^-/\text{NO}_2^-$	121
Figure 54 : Observations en microscopie en épifluorescence sur membranes de filtration des bactéries, après marquage à l'acridine orange.	123
Figure 55 : Evolution du nombre total de bactéries et des températures de prélèvement correspondantes sur les différentes campagnes de prélèvement.....	124
Figure 56 : Distribution des profils CE-SSCP de diversité bactérienne au niveau des différents ouvrages ciblés.....	125
Figure 57 : Evolution des profils CE-SSCP de diversité bactérienne en fonction du temps au niveau des différents ouvrages	127
Figure 58 : Cinétique de minéralisation globale des substrats carbonés.....	128
Figure 59 : Développement moyen de la coloration des puits en fonction de la température à l'issue d'une période de 120 h d'incubation	130
Figure 60 : Mesures d'activité en fonction de la température pour des eaux brutes et amendées en extrait de levures (10 mg/l).....	132
Figure 61 : Activité hydrolytique en fonction de la température	132
Figure 62 : Indices de saturation calculés d'après les calculs de spéciation	134
Figure 63 : Incidence d'une hausse de température sur la stabilité des minéraux et sur le pH des eaux de la nappe pour une pression partielle en CO_2 de -1,59 (unité logarithmique).....	135
Figure 64 : Incidence d'une hausse de température sur la stabilité des minéraux et sur le pH des eaux de la nappe pour une pression partielle en CO_2 de $10^{-3.5}$ atm (ou -3,5 en unité logarithmique).....	136
Figure 65 : Cartographie des PAC/CLIM inventoriées dans l'agglomération lyonnaise.....	143
Figure 66 : Coupe géologique Est-Ouest schématique du secteur d'étude (Nicolas et al., 2004)	144
Figure 67 : Principales entités hydrogéologiques présentes au niveau de l'agglomération lyonnaise (Durst et al., 2012).....	145
Figure 68 : Carte piézométrique de l'agglomération lyonnaise en période de moyennes eaux (Novembre 2004)	146
Figure 69 : Configuration du doublet géothermique et du réseau de surveillance crée	149
Figure 70 : Sonde multiparamètres installée dans chaque ouvrage sur le site expérimental	149

Figure 71 : Carotte de sédiment prélevée sur le piézomètre SP1, entre 8,5 et 10 m de profondeur	150
Figure 72 : Images en lumière naturelle d'un grain de calcaire oolithique (a) et d'un grain de calcaire bioclastique (b).....	151
Figure 73 : Images en lumière polarisée de grains de quartzite avec présence de recristallisation (a) et présence d'amas argileux/micacés (b).....	151
Figure 74 : Images en lumière polarisée d'un grain de silex composé de silice microstalline (a) et d'un grain de calcaire bioclastique avec inclusion de glauconite.....	151
Figure 75 : Composition de l'assemblage minéralogique reconstitué à partir des analyses de la matrice sédimentaire	154
Figure 76 : Température de la nappe relevée sur l'ouvrage P4, en dehors de la zone d'influence de l'installation géothermique	155
Figure 77 : Approximation de l'évolution des températures extérieures par une courbe sinusoïdale du type $T_t = T_m + T_i \sin\left[\frac{2\pi}{365}(wt)\right]$ (selon Taniguchi, 1993)	156
Figure 78 : Température de la nappe et température extérieure sur la période d'investigation	156
Figure 79 : Comparaison des températures observées et calculées.....	157
Figure 80 : Evolution des températures de réinjection relevées au puits de rejet.....	158
Figure 81 : Comparaison des chroniques de température dans les ouvrages de production et de réinjection.	159
Figure 82 : Evolution du régime thermique de la nappe au niveau des différents ouvrages sur une période de 18 mois.....	160
Figure 83 : Diagramme de Piper et de Stiff avec positionnement des eaux de 4 piézomètres.....	162
Figure 84 : Indices de saturation des eaux prélevées vis-à-vis de quelques minéraux carbonatés (calcite CaCO_3 , dolomite $\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$ ordonnée ou désordonnée et rhodochrosite MnCO_3) en fonction du pH.....	164
Figure 85 : Indices de saturation des eaux prélevées vis-à-vis de la silice (SiO_2) plus ou moins bien cristallisée en fonction de la température.	165
Figure 86 : Diagramme potentiel redox vs. pH de l'azote ($0,6 \mu\text{mol N/l}$, 25 C, non-prise en compte du N_2) et position des points des prélèvements d'après le pH et le potentiel redox mesurés in situ, et les potentiels redox calculés des couples $\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}$, NO_2/NO_3	166
Figure 87 : Evolution du potentiel d'oxydo-réduction entre le piézomètre P4, non impacté, et le piézomètre P1, fortement impacté par les rejets thermiques	167
Figure 88 : Evolution des teneurs en oxygène dissous au niveau des piézomètres impactés (P1 et P2)	168
Figure 89 : Evolution des teneurs en oxygène dissous au niveau du piézomètre non impacté (P4)..	168
Figure 90 : Observations en microscopie en épifluorescence, sur membranes de filtration, des bactéries après marquage à l'acridine orange.....	169
Figure 91 : Evolution du nombre totale de bactéries et des températures de prélèvements correspondantes sur les différentes campagnes de prélèvements.	170
Figure 92 : Corrélation entre température de prélèvement et biomasse bactérienne totale ; les coefficients de corrélations ont été mentionnés à titre indicatif.	171
Figure 93 : Evolution de l'activité bactérienne et des températures de prélèvements correspondantes au cours de la période d'étude.	173
Figure 94 : Analyse en composantes principales (ACP) des mesures des activités biologiques couplées aux mesures de biomasse totale, de température et de carbone organique total.	174

Figure 95 : Développement moyen de la coloration des puits en fonction de la température à l'issue d'une période de 120 h d'incubation	175
Figure 96 : Cinétique de minéralisation de l'acide D-galacturonique en fonction de la température.	175
Figure 97 : Comparaison des profils de diversités obtenus sur les piézomètres non impactés.	177
Figure 98 : ACP sur matrice de diversité sur les différents points de prélèvements en fonction des différentes périodes de l'année.	178
Figure 99 : Mise en évidence de l'évolution temporelle des profils de diversités obtenus sur le piézomètre P4 (non impacté).....	179
Figure 100 : ACP sur matrice de diversité sur les différents points de prélèvements en fonction des différentes périodes de l'année.	179
Figure 101 : Représentation des indices de biodiversité calculés selon les points de prélèvement pour chaque campagne de mesure.	180
Figure 102 : Boîte de Tukey (Boxplot) représentant les indices de diversités calculés sur l'ensemble de la période d'étude pour les piézomètres impactés (P1, P2) et les piézomètres non impactés (P3, P4). La partie centrale de cette représentation (rectangulaire) inclut 50 % de la distribution, la médiane étant figurée en rouge. Les frontières hautes et basses de part et d'autre de la partie centrale délimitent les valeurs dites « adjacentes », au-delà desquelles les valeurs sont considérées comme atypiques ou exceptionnelles.....	181
Figure 103 : Corrélation entre indices de diversité calculés et température.....	182
Figure 104 : Analyse de co-inertie des données physico-chimiques et des données de structure des communautés.....	184
Figure 105 : Profils de température et de concentrations absolues (C en molal) ou relatives (rapportées à la concentration initiale C_0) pour différents éléments.	186
Figure 106 : Schéma d'implantation du dispositif expérimental incluant 3 sondes géothermiques verticales et 3 piézomètres de suivi	193
Figure 107 : Opération de forage au cœur du site orléanais du BRGM avec un carottage systématique des sédiments traversés.....	193
Figure 108 : Machinerie thermodynamique de régulation en chaud et en froid des échangeurs géothermiques	194
Figure 109 : a) Spectre de diffusion dans la fibre optique traversée par une longueur d'onde λ_0 et, b) Evolution du spectre Raman avec la température.....	195
Figure 110 : Positionnement des fibres optiques dans une sonde géothermique à 4 tubes	196
Figure 111 : Vue du pied de la sonde géothermique coaxiale (5 tubes) équipée de sa fibre optique de mesure de température	196
Figure 112 : Esquisse géologique simplifiée de la région Centre (carte non validée par le Comité de la carte géologique) (D. Vaslet, BRGM, 2001).....	197
Figure 113 : Coupe géologique simplifiée de la région Centre selon le transect A-B (nord-sud)	198
Figure 114 : Fontis observé sur la commune de Jargeau (Géosciences, BRGM), correspondant à l'effondrement des terrains surmontant la voûte d'une cavité karstique.....	199
Figure 115 : Plan de localisation du site du BRGM par rapport aux grandes entités géologiques de la région	199
Figure 116 : Coupe géologique simplifiée des terrains traversés illustrée par quelques portions de terrains correspondant aux principales formations rencontrées (carottes).....	201

Figure 117 : Carte piézométrique de la nappe des calcaires de Beauce en période de hautes eaux (avril 2005) (données sources communiquées par la DREAL).....	202
Figure 118 : Aperçu des différents cortèges minéralogiques le long de la séquence verticale (0 et 100m) du forage « sonde géothermique S1 » de la plateforme géothermique du site du BRGM à Orléans.	206
Figure 119 : Profils verticaux de distribution des principaux paramètres physico-chimiques non conservatifs au niveau des deux assises calcaires ; a) assise supérieure (calcaire de Pithiviers) dans le P3 et b) assise inférieure (calcaire d'Etampes) dans le P1 ; ZC = zone crépinée de l'ouvrage.....	207
Figure 120 : Diagrammes de Piper et de Stabler établis à partir des eaux prélevées au niveau des 3 ouvrages interceptant les nappes des deux assises calcaires (nappe des calcaires d'Etampes et nappe des calcaires de Pithiviers).	210
Figure 121 : Diagramme de Pourbaix simplifié, $p_e=f(pH)$, des principales espèces azotées (concentration totale en espèce dissoute : $c=10^{-3}$ M ; température = 25 °C ; exclusion du N_2) et représentation des points de prélèvements, ainsi que des potentiels redox calculés et mesurés des couples NO_3^-/NO_2^- et NO_3^-/NH_4^+	211
Figure 122 : Ajustement du signal émis par la fibre optique avant la mise en œuvre de l'essai (FO = fibre optique).....	214
Figure 123 : Dispositif de prélèvement innovant d'eau mis en œuvre dans le cadre des essais.....	215
Figure 124 : Principe de fonctionnement du dispositif de prélèvement d'eau	216
Figure 125 : Répartition des champs de température en fonction de la profondeur et du temps. L'emplacement de la zone de prélèvement est symbolisé par un trait pointillé.	217
Figure 126 : Mise en évidence des variations saisonnières de température dans la tranche superficielle de l'ouvrage P2 (hors zone d'influence de la sonde). La zone d'influence se limite à une profondeur d'environ 10 m.	218
Figure 127 : Comparaison entre températures simulées et mesurées au niveau de la zone marneuse, à une distance de 3 m de la sonde géothermique.	220
Figure 128 : Comparaison entre températures simulées et mesurées au niveau de la zone calcaire perméable, à une distance de 3 m de la sonde géothermique.....	220
Figure 129 : Evolution des indices de saturation des eaux prélevées vis-à-vis des phases minérales carbonatées.....	221
Figure 130 : Evolution des indices de saturations des eaux prélevées vis-à-vis de la silice, plus ou moins bien cristallisée	222
Figure 131 : Evolution du pH et du potentiel redox au cours de l'essai (l'évolution des températures correspond à l'évolution temporelle)	223
Figure 132 : Evolution des teneurs en nitrates durant la période de l'essai (l'évolution des températures correspond à l'évolution temporelle)	224
Figure 133 : Observations en microscopie en épifluorescence sur membranes de filtration des bactéries, après marquage à l'acridine orange.	225
Figure 134 : Evolution du nombre de bactéries totales durant la période de l'essai	226
Figure 135 : Comparaison entre (i) les courbes de restitution expérimentales obtenues pour les 3 colonnes (figure de gauche) et (ii) une série de simulations numériques (figure de droite) faisant intervenir différentes valeurs de α_L	231
Figure 136 : Ajustement du modèle numérique aux courbes de restitutions expérimentales (calage obtenu pour une valeur de $\alpha_L=0,18$ m).....	231

Figure 137 : Evolution de la conductivité électrique et des teneurs en calcium en sortie de colonne durant la phase de saturation, suivie de la mise à l'équilibre chimique.....	233
Figure 138 : Evolution de la solubilité des phases minérales en fonction de la température comme révélées par les valeurs des indices de saturation.....	237
Figure 139 : Exemple de suivi des caractéristiques de l'eau d'alimentation : pH, température, alcalinité, et calcium.....	238
Figure 140 : Evolution à 28°C des concentrations sur les 8 premiers volumes de pores des paramètres suivants : a) alcalinité, b) calcium, c) silice dissoute, d) pH, e) conductivité électrique à 25°C et f) évolution de la température au sein de la colonne lors de la montée en température ; les teneurs initiales de l'eau d'alimentation sont reportées sur chaque graphique par un trait pointillé horizontal.	239
Figure 141 : Evolution à 45°C sur les 8 premiers volumes de pores des paramètres suivants : a) alcalinité, b) nitrate, c) calcium, d) silice dissoute, e) pH, f) conductivité électrique à 45°C et g) température au sein de la colonne lors de la montée en température ; les teneurs initiales de l'eau d'alimentation sont reportées sur chaque graphique par un trait pointillé horizontal.....	241
Figure 142 : Ajustement du modèle numérique aux courbes de restitutions expérimentales (calage obtenu pour une valeur de $\alpha_L=0.5$ m).....	245
Figure 143 : Evolution des teneurs en NO_3^- et NO_2^- en fonction du volume d'eau porale. Les teneurs initiales en NO_3^- sont indiquées par un trait pointillé horizontal.....	247
Figure 144 : Cinétique de réduction dissimulatrice des nitrates à 15°C	248
Figure 145 : Evolution des teneurs en fer total en sortie de colonne. Notons que l'eau d'alimentation est totalement dépourvue de fer en solution (mesures journalières).....	249
Figure 146 : Evolution du potentiel d'oxydo-réduction de l'effluent en sortie de colonne ; la valeur de la solution d'alimentation est symbolisée par un trait pointillé horizontal	252
Figure 147 : Evolution des teneurs en NO_3^- et NO_2^- en fonction du volume d'eau porale. Les teneurs initiales en NO_3^- sont indiquées par un trait pointillé horizontal.....	252
Figure 148 : Comparaison des cinétiques de réduction des nitrates entre les essais réalisés à 15 et 25°C	253
Figure 149 : Evolution des teneurs en silice dissoute lors de l'essai en colonne à 25°C.....	254
Figure 150 : Comparaison des cinétiques de réduction des nitrates inter-essais (15, 25 et 35°C).....	255

Liste des tableaux

Tableau 1 : Comparatif de différents matériaux sur la base des critères énoncés ci-dessus (modifié d'après Dupraz (2008)).....	40
Tableau 2 : Exemple de dimensionnement de colonnes pour l'étude expérimentale des écoulements en milieu poreux saturé. Les unités sont exprimées en cm	41
Tableau 3 : Paramètres de contrôle du dispositif	43
Tableau 4 : Procédures de conditionnement des échantillons et flaconnage associé (PE = Polyéthylène ; V = Verre ; COT et COD = Carbone organique total et dissous respectivement ; MES = Matière en suspension ; HAP = Hydrocarbures aromatiques polycycliques)	61
Tableau 5 : Contribution de diverses espèces aqueuses à l'alcalinité	67
Tableau 6 : Quantification des espèces chimiques en solution : techniques analytiques et instrumentation	75
Tableau 7 : Liste des éléments analysés.....	76

Tableau 8 : Germes pathogènes et indicateurs de contamination fécale - méthodes d'évaluation.	83
Tableau 9 : Liste des 31 sources de carbones présentes dans les microplaques EcoPlates™ Biolog. (Choi & Dobbs, 1999)	86
Tableau 10 : Résultats de l'analyse chimique globale (majeurs et traces) de la matrice sédimentaire	103
Tableau 11 : Analyse de la capacité d'échange cationique et mesure des cations échangeables	104
Tableau 12 : Amplitudes de variation annuelle de la température de la nappe et déphasages des extrema (en jours) avec ceux de la température extérieure	108
Tableau 13 : Paramètres cinétiques d'ajustement du modèle. Avec A=absorbance maximale dans un puits, μ_m = vitesse maximale de développement de la coloration et λ , le temps de latence.	129
Tableau 14 : Valeurs du Q10 en fonction de la gamme de température concernée.....	130
Tableau 15 : Résultats de l'analyse chimique globale du sédiment.....	152
Tableau 16 : Analyse de la CEC et dosage des cations échangeables	153
Tableau 17 : Caractéristiques thermiques des différents ouvrages à l'échelle d'un cycle annuel	161
Tableau 18 : Synthèse des points de mesure révélant la présence d'agents potentiellement infectieux.....	172
Tableau 19 : Paramètres cinétiques d'ajustement du modèle. Avec A=absorbance moyenne maximale dans les puits, μ_m = vitesse maximale de développement de la coloration et λ = temps de latence	176
Tableau 20 : Valeurs du Q10 en fonction de la gamme de température concernée.....	176
Tableau 21 : Assemblage minéralogique utilisé dans la modélisation transport réactif à l'échelle du site.	185
Tableau 22 : Tableau récapitulatif des transmissivités des formations géologiques concernées	203
Tableau 23 : Analyses comparatives des compositions chimiques obtenues par spectrométrie de fluorescence X en fonction de la profondeur.....	204
Tableau 24: Synthèse des résultats issus de la phase de reconstitution minéralogique (% massique) des sédiments du site de la plateforme géothermique du site du BRGM à Orléans	205
Tableau 25 : Comparatif des propriétés chimiques des eaux souterraines des calcaires de Pithiviers et d'Etampes.....	212
Tableau 26 : Propriétés thermiques des couches rencontrées (d'après Pahud, 2002)	219
Tableau 27 : Principaux paramètres obtenus à l'issue des tests de traçages sur les 3 colonnes	232
Tableau 28 : Evolution des différents paramètres physico-chimiques au cours des incubations. Les augmentations ou les diminutions des paramètres (pH, conductivité) et des teneurs en espèces chimiques sont indiquées par des couleurs vertes et rouges respectivement. (ND = Non déterminé ; LQ = limite de quantification ; T_0 = composition initiale ; teneurs en mmol/L ; conductivité en $\mu S/cm$)	234
Tableau 29 : Principaux paramètres obtenus à l'issue des tests de traçages sur les colonnes	245
Tableau 30 : Comparaison des cinétiques de réduction des nitrates inter-essais.....	253

Introduction

Face aux menaces majeures que laissent présager le réchauffement climatique et l'épuisement inévitable des ressources fossiles, la protection de l'environnement et du climat figure parmi les défis essentiels du XXI^e siècle et occupe une place de plus en plus prépondérante au sein de nos sociétés. Cette prise de conscience collective se traduit :

- a) au niveau européen par l'adoption le 23 janvier 2008 par l'Union Européenne d'un plan climat-énergie européen, aussi appelé paquet climat-énergie (élément de la future directive cadre énergies renouvelables de l'UE), qui fixe des mesures ambitieuses d'ici l'horizon 2020 (objectif dit 3x20 consistant à réduire de 20% les émissions de gaz à effet de serre, atteindre 20 % d'énergies renouvelables et diminuer de 20 % la consommation globale d'énergie),
- b) au niveau national, au travers du Grenelle de l'environnement (Grenelle I et II), relayés jusqu'au niveau régional ou des collectivités locales *via* les grands schémas régionaux, les plans climat-énergie territoriaux, agendas 21....

En France, le Grenelle de l'Environnement prévoit de porter d'ici 2020, à plus de 23% la part des énergies renouvelables au bouquet énergétique et de réduire d'un facteur 4 les émissions de gaz à effet de serre à l'horizon 2050. L'enjeu pour la filière géothermique est de multiplier par 6 la production de chaleur et par un facteur 10 la production d'électricité à l'échéance 2020. Les secteurs où sont attendues les progressions de marché les plus importantes portent sur l'utilisation des réseaux de chaleur alimentés par la géothermie profonde ainsi que sur le développement de la production thermique pour l'habitat, le résidentiel collectif et le tertiaire (chauffage, climatisation, eau chaude sanitaire), notamment avec l'usage des pompes à chaleur à partir des ressources superficielles.

Malgré ces objectifs ambitieux, le développement des pompes à chaleur sur le territoire français depuis quelques décennies ne s'est pas accompagné d'un effort de recherche et de développement suffisamment abouti, principalement en ce qui concerne l'évaluation des impacts environnementaux associés à l'exploitation thermique du milieu souterrain. Ce constat s'applique notamment dans le cas d'injection d'eau de refroidissement qui peut largement excéder des températures de 25°C, soit plus de 10°C par rapport aux températures généralement relevées pour les nappes d'eau superficielles. Aussi, dans certaines grandes agglomérations, implantées sur de larges vallées alluviales aux caractéristiques hydrauliques attrayantes, de grandes puissances thermiques peuvent être actuellement dissipées dans les nappes, sans aucun dispositif de surveillance adapté.

Dans ce contexte et face au redéploiement de la filière géothermique, les travaux menés au cours de cette thèse contribuent à l'évaluation de l'impact de variations locales de température sur la qualité physico-chimique et microbiologique des eaux souterraines, de manière à lever certains verrous scientifique, en particulier :

- Evaluer dans quelle mesure les rejets thermiques sont susceptibles d'affecter la sténothermie des nappes d'eau souterraines, c'est-à-dire la relative constance des températures au cours du temps.
- Déterminer les incidences des fluctuations de température au niveau des équilibres géochimiques et biologiques, en relation avec les processus biogéochimiques qui régissent la qualité des eaux souterraines.
- Dédire les conséquences possibles à l'échelle de l'installation, pour la pérennité des équipements, ainsi qu'au niveau de la qualité de la ressource en eau.
- Développer et valider des indicateurs physico-chimiques et/ou microbiologiques, dont la présence ou l'état serait susceptible de caractériser l'ampleur des perturbations.

C'est en vue de répondre à ces objectifs ambitieux que, dans la cadre de cette thèse, divers équipements et méthodes ont été mis en œuvre ou adaptés ou améliorés et diverses activités associées ont été accomplies à trois niveaux d'échelle : 1) au laboratoire de physicochimie et de microbiologie, 2) sur trois installations géothermiques réels et 3) sur un dispositif pilote original créé pour l'occasion pour reproduire aussi fidèlement que possible les conditions rencontrées au niveau des sites d'études.

Ce manuscrit est structuré de la manière suivante :

- ✓ **Le premier chapitre** s'attache à introduire les notions nécessaires à la compréhension des différents aspects développés dans le cadre de ces travaux. Après avoir évoqué les différents facteurs susceptibles d'affecter le régime thermique des nappes d'eaux superficielles, la seconde partie fait état des connaissances acquises quant à l'influence de la température sur les processus physico-chimiques et microbiologiques, susceptibles d'entraver ou de compromettre l'exploitation de la ressource.
- ✓ **Le second chapitre** est consacré à la description générale de l'ensemble des procédures et des méthodes analytiques employées lors de cette étude. L'accent est, tout d'abord, porté sur la présentation d'un dispositif de percolation en colonnes élaboré dans le cadre de cette étude, incluant les aspects méthodologiques relatifs à la

conduite des essais. Seront précisées par la suite la description générale des procédures de prélèvements d'eaux souterraines, les méthodes d'analyses chimiques et microbiologiques, et enfin, l'approche adoptée pour le traitement des résultats. Pour plus de lisibilité, certaines descriptions spécifiques de procédures et/ou méthodes seront reportées dans les chapitres III, IV, V et VI.

- ✓ **Les chapitres III, IV et V** présentent les résultats relatifs aux suivis expérimentaux *in-situ* menés respectivement au niveau de trois installations géothermiques réelles, exploitant les nappes d'eau souterraines à des fins de climatisation. Celles-ci sont caractérisées par des contextes hydrogéologiques distincts et mettent en œuvre les deux technologies les plus répandues sur le territoire national : des sondes géothermiques verticales et des doublets de forages géothermiques. Pour chacun de ces trois sites, le bilan des investigations sera précédé d'un aperçu général du cadre hydrogéologique, accompagné d'une description détaillée du site et du réseau de surveillance implanté au droit de chaque site.
- ✓ **Le chapitre VI** détaille les travaux menés à l'échelle du dispositif expérimental de percolation (pilote BIOTHERMEX installé dans la halle technique du BRGM), dans des conditions s'apparentant aussi fidèlement que possible à celles rencontrées au niveau des sites d'études.
- ✓ **Le dernier volet** de ce document établit les conclusions et perspectives des travaux exposés dans les chapitres précédents. Celui-ci met en exergue la contribution de ce travail tant pour l'approche méthodologique mise en œuvre que pour l'amélioration des connaissances, en particulier l'influence de la température sur le milieu souterraine.

Chapitre I :

Revue Bibliographique

Ce premier chapitre s'attache à introduire les concepts et les notions nécessaires à la compréhension des différents champs thématiques développés dans le cadre de ces travaux. Après avoir évoqué les différents facteurs susceptibles d'affecter le régime thermique des nappes d'eaux superficielles, nous dresserons, en seconde partie, la synthèse de l'état des connaissances acquises quant à l'influence de la température sur les processus physico-chimiques et microbiologiques, susceptibles d'entraver ou de compromettre l'exploitation de la ressource.

1. Facteurs influençant le régime thermique des nappes d'eaux superficielles : composantes naturelles et forçage extrinsèque

1.1 Composantes naturelles

En l'absence de toute perturbation, les températures de subsurface sont principalement gouvernées par le gradient géothermique et par l'historique des échanges à la surface du sol (Taniguchi *et al.*, 2008).

La principale source de chaleur de la couche superficielle du sous-sol a pour origine les radiations solaires (Lee, 2006) et les transferts thermiques s'opèrent principalement par conduction. La pénétration des ondes thermiques depuis la surface du sol jusqu'à la nappe s'atténue considérablement (*i.e* de manière exponentielle) avec la profondeur et dépend principalement des propriétés des terrains de recouvrement (épaisseur, porosité, diffusivité thermique, ...) et, dans une certaine mesure, de la nature du couvert végétal, ou encore de l'exposition des terrains.

On considère habituellement que le milieu souterrain peu profond enregistre, jusqu'à une vingtaine de mètre, les variations annuelles de température (zone dite « perturbée » sur la figure 1) avec cependant un déphasage important, lié à l'inertie thermique des terrains traversés (de relativement faibles conductivités thermiques).

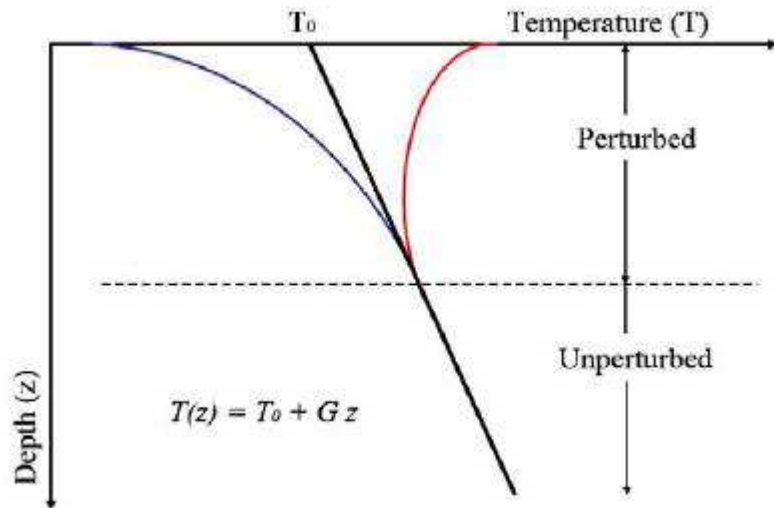


Figure 1 : Illustration de la distribution des températures de subsurface contrôlée d'une part par le gradient géothermique et d'autre part par les températures de surface (d'après Huang et al., 2008)

Il en résulte ainsi des variations saisonnières de la température des nappes dont l'amplitude est fonction de la profondeur à laquelle elles sont positionnées (figure 2). Ainsi en hiver, la température de la nappe est supérieure à celle de l'air et de la couche superficielle du sol et le phénomène inverse se produit en période estivale. La température des nappes oscillent ainsi autour d'une valeur centrale de température qui correspond en général à la moyenne des températures annuelles de surface.

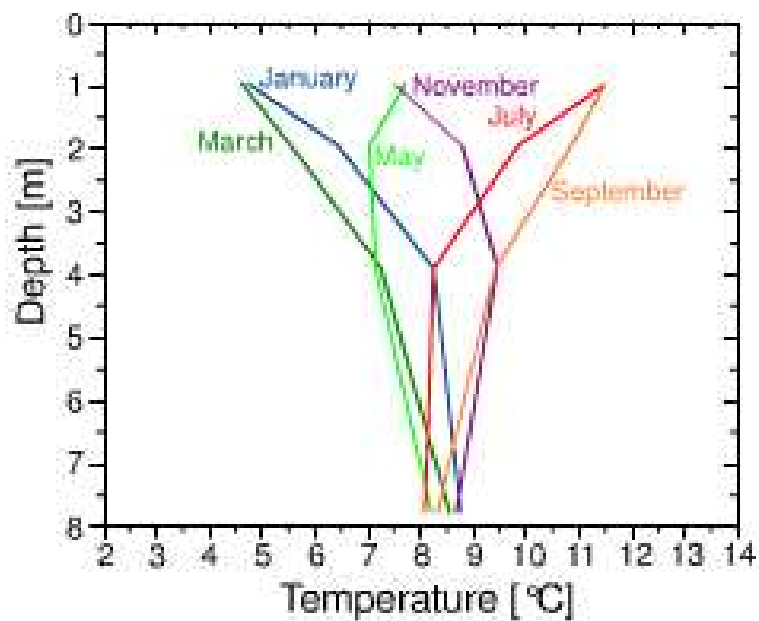


Figure 2 : Illustration des variations annuelles de température en fonction de la profondeur (d'après Sanner, 2001)

Au-delà d'une certaine profondeur (15-20m), l'impact des variations climatiques au travers des saisons est significativement réduit et ce sont les grands équilibres géologiques et hydrogéologiques qui pilotent les niveaux de température. Le gradient géothermique moyen augmente de 3°C, par tranche de 100 m de terrain.

Les autres facteurs qui sont susceptibles d'affecter sensiblement la relative sténothermie des nappes d'eaux superficielles sont notamment :

- les interactions avec un cours d'eau (nappe alluviale par exemple) : les échanges thermiques entre ces deux entités ont lieu à travers le fond du lit (zone hyporhéique) et les rives. Le sens des échanges est déterminé par la position relative des niveaux d'eaux entre le cours d'eau et la nappe (Poulin, 1988). Dans ce cas, l'essentiel de la chaleur transférée est véhiculée par advection et l'influence thermique est très variable selon le contexte.
- la présence d'un plan d'eau (ex : lac), qui présente habituellement des variations de température d'autant plus importantes au cours de l'année que la profondeur d'eau est faible. Ainsi, en hiver, le plan d'eau va concourir au refroidissement de la nappe et inversement, en été, il aura tendance à réchauffer l'eau souterraine. Cet impact thermique ne concerne, en général, que la partie de la nappe en aval hydraulique du plan d'eau.
- la proximité d'une zone d'infiltration de masses d'eau pluviale (apport advectif de calories ou de frigories selon l'époque de l'année et le régime des précipitations) ou de masses d'eau issue de la fonte des neiges.
- la présence d'un écoulement souterrain susceptible d'affecter sensiblement la distribution des températures à une profondeur donnée (Kayane *et al.*, 1985 ; Taniguchi *et al.*, 2008).

1.2 Composantes anthropiques

Les activités humaines sont susceptibles d'induire des perturbations thermiques dans le proche sous-sol qui se manifestent, soit par des effets directs (pompage et réinjection d'eau de température différente, bassin d'infiltration d'eaux pluviales), soit par des effets indirects, principalement concentrés en zones urbanisées.

1.2.1 Effets indirects

On constate, depuis un certain nombre d'années, un réchauffement avéré des nappes phréatiques sous de nombreuses grandes agglomérations à travers le monde, soulevant ainsi des questionnements sur le devenir qualitatif de la ressource dans un contexte de réchauffement climatique global. D'un point de vue phénoménologique, ce réchauffement fait intervenir de multiples processus dont il apparaît difficile, à ce jour, de quantifier la part relative à chacun d'entre eux.

L'apport thermique le plus remarquable en zone urbanisée est représenté par le phénomène d'îlot de chaleur urbain (ICU) (Howard, 1833), qui désigne des élévations localisées des températures, enregistrées dans les zones urbaines/périurbaines en comparaison avec les zones rurales environnantes (Figure 3) ou par rapport aux températures moyennes régionales.

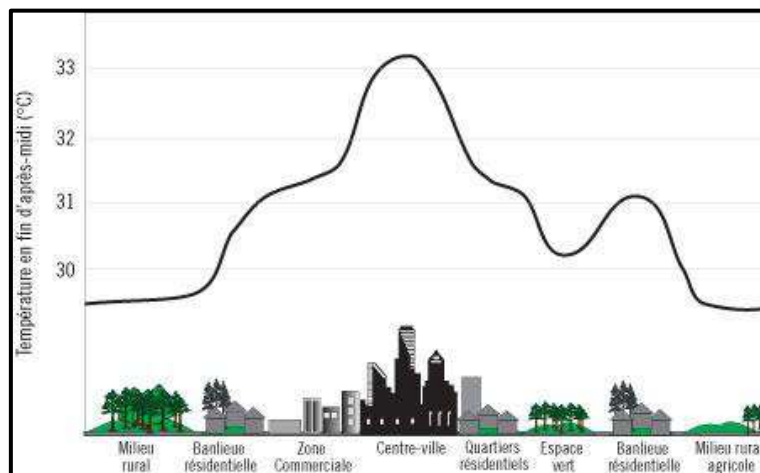


Figure 3 : Profil d'un îlot thermique urbain (Source : www.rncan.gc.ca)

Sans entrer dans des considérations détaillées, ce microclimat artificiel résulte principalement des actions synergiques de deux facteurs :

- une activité humaine intense dans un espace restreint (moteur à combustion, usines, chaudières, réseaux d'assainissement ou de chaleur enterrés,...). Ces activités constituent des sources importantes et plus ou moins chroniques de chaleur et vont concourir à l'augmentation des températures maximales diurnes et nocturnes.
- modification des caractéristiques de la surface : remplacement des surfaces végétalisées par surfaces artificielles imperméables de faible pouvoir réfléchissant (albédo). Cette artificialisation du territoire induit une baisse significative de

l'évapotranspiration (rôle de régulateur thermique du fait de la nature endothermique des réactions) associée à une forte hausse de la capacité à capter et emmagasiner d'énergie.

Les études sur les ICU ont surtout porté sur l'évaluation et la compréhension des effets de l'urbanisation sur les variations de température atmosphériques. En comparaison, très peu de travaux ont été engagés sur l'étude des répercussions au niveau de l'environnement souterrain, et de surcroît sur les nappes phréatiques. D'après Huang *et al.* (2008), les effets liés à l'urbanisation pourraient être beaucoup plus persistants sur le sous-sol que les impacts sur l'atmosphère. Dans de nombreuses agglomérations, on observe ainsi un réchauffement significatif du sous-sol et des eaux souterraines, jusqu'à 5°C (Ferguson et Woodbury 2004), y compris dans des secteurs dépourvus d'installations géothermiques (Allen *et al.*, 2003 ; Taniguchi *et al.*, 2008 ; Huang *et al.*, 2008).

De plus, il semblerait que les perturbations thermiques puissent se propager à des profondeurs importantes, supérieures à 30 mètres, modifiant ainsi le gradient géothermique (Fergusson et al., 2004).

1.2.2 Effets directs

Le régime thermique des nappes d'eau souterraines peut être largement influencé par les activités anthropiques qualifiées de « directes », qui regroupent principalement l'exploitation géothermique par pompes à chaleur (PAC) ainsi que l'injection d'eaux de refroidissements issus des procédés industriels. Seuls les aspects relatifs à la géothermie seront abordés dans cette section.

1.2.2.1 Principaux dispositifs d'échanges

Parmi les nombreuses solutions techniques existantes pour échanger de l'énergie avec le proche sous-sol, nous nous limiterons aux deux principaux dispositifs les plus répandus sur le territoire national :

- Système d'échange sur sonde verticale (Figure 1a) :

Ce dispositif consiste à faire circuler, en boucle fermée, dans un réseau de capteurs verticaux d'une profondeur comprise entre 50 et 150 m, un fluide caloporteur, généralement de l'eau

glycolée, afin d'en extraire les calories ou les frigories selon le mode de fonctionnement de l'installation (chauffage ou climatisation). Ces sondes verticales sont reliées en surface à une pompe à chaleur qui permet d'ajuster les niveaux de température aux besoins de l'habitat. Ces systèmes sont généralement employés lorsque le proche sous-sol ne contient pas d'aquifère, ou dans le cas où une ressource en eau est présente mais qui n'a pas les caractéristiques hydrodynamiques requises pour autoriser l'exploitation par un doublet de forage. Par ailleurs, les puissances thermiques mises en jeu sont généralement aux opérations sur nappes aquifères, du fait de la nature des transferts thermiques (diffusion).

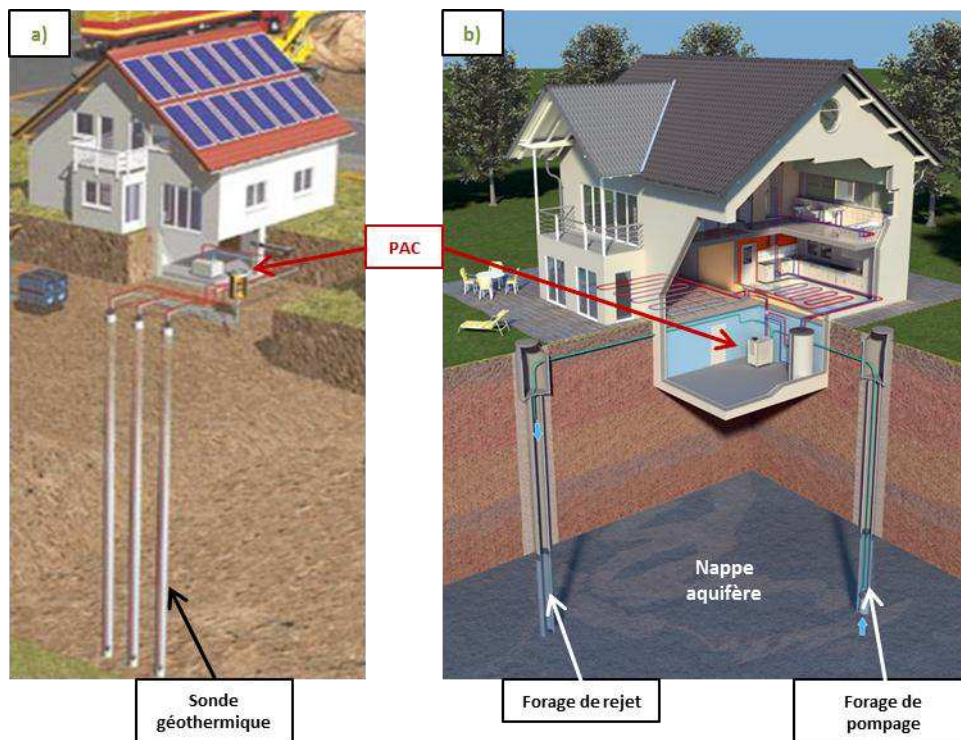


Figure 4 : Illustration des deux principaux modes d'exploitation géothermiques des ressources superficielles, i.e les sondes géothermiques (a) et les doublets de forages sur nappe (b) (Source : brochure ELCO, Suisse)

- Système d'échange par système de doublet de forages (Figure 1b) :

Le principe des installations fonctionnant sur les aquifères superficiels est sensiblement identique à celui mis en œuvre pour l'exploitation des ressources profondes, la différence majeure étant située au niveau des températures d'extraction. Dans le principe, l'eau du réservoir est tout d'abord puisée dans un puits de pompage (ou encore puits de production), acheminée en surface jusqu'à un système d'échange dans lequel les calories (ou les frigories) destinées au chauffage (ou à la climatisation) sont prélevées, puis l'eau est réinjectée à un débit

équivalent dans un forage voisin à une température voisine de 5-6°C en mode chauffage, et à une température d'environ 25°C en mode climatisation. La pratique de la réinjection assure le maintien des pressions de la nappe et permet aux exploitants de s'acquitter de la redevance sur les prélèvements d'eau. Ce dispositif d'exploitation en boucle ouverte par doublet de forages est de loin le plus courant sur le territoire français du fait des bonnes perméabilités des aquifères superficiels.

1.2.2.2 Impact thermique sur l'aquifère

Les frigories ou calories injectées au niveau de la nappe sont à l'origine d'une perturbation chaude ou froide qui se développe d'abord au voisinage du puits d'injection et rompt l'équilibre thermique du milieu : la nappe à l'aplomb du site s'échauffe durant la période estivale et/ou se refroidit en hiver. Cette portion d'aquifère impacté par les rejets thermiques est généralement désignée sous le terme de panache, dont l'extension et la progression au cours du temps vont dépendre des propriétés intrinsèques de l'aquifère (géométrie, nature des formations sédimentaires, vitesse d'écoulement régional, ...) et des conditions d'exploitations (température et débit d'injection). La figure 5 illustre, à titre d'exemple, le résultat de simulations numériques schématisant les positions des panaches et des fronts thermiques au niveau de différents doublets géothermiques situés dans l'agglomération strasbourgeoise.

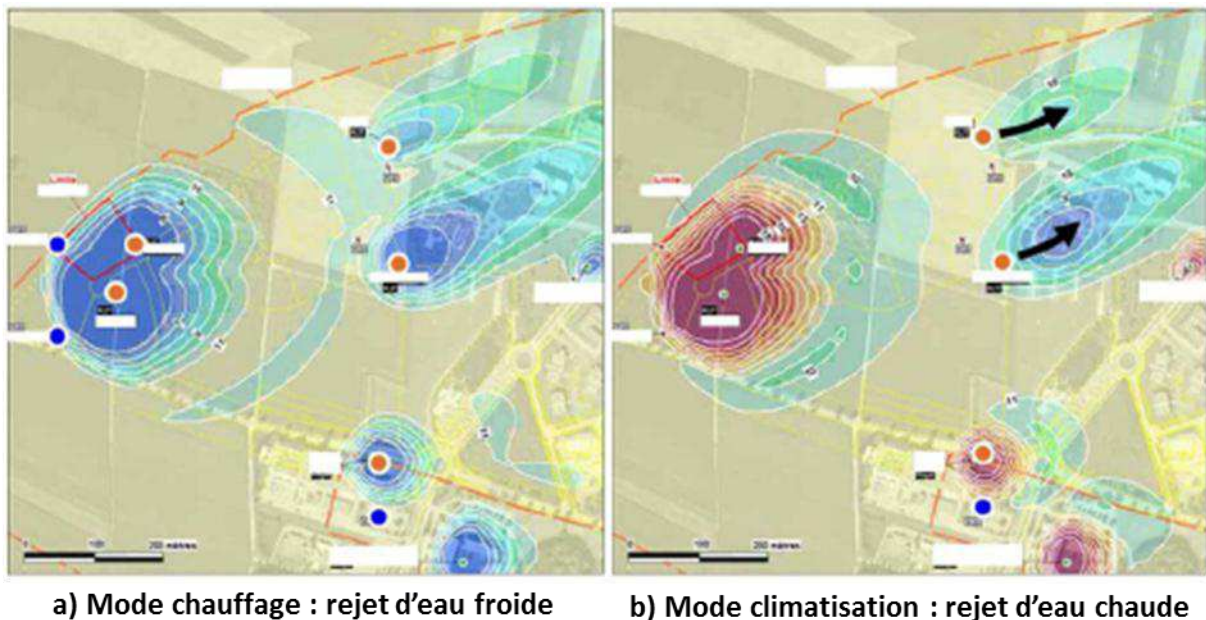


Figure 5 : Représentation des panaches thermiques associés à différents doublets géothermiques exploitant la nappe à des fins de chauffage ou de climatisation au niveau de la ville de Strasbourg
(Source : ANTEA)

2. Etat des connaissances sur l'influence de la température sur la qualité des eaux souterraines

2.1 Considérations théoriques

Le rôle de la température est complexe, puisque celle-ci agit simultanément sur de nombreux paramètres. La quasi-totalité des réactions chimiques est en effet fonction de la température. Les paragraphes suivants fournissent un aperçu (liste non exhaustive) des principaux mécanismes réactionnels mis en jeu et, le cas échéant, adaptés aux espèces d'intérêt de cette thèse.

2.1.1 Influence de la température sur les réactions chimiques

2.1.1.1 Généralités sur les équilibres chimiques

2.1.1.1.1 Loi d'action de masse et thermodynamique

La loi d'action de masse constitue la formulation de base pour la résolution d'un équilibre chimique. Elle permet, d'une manière générale, de caractériser quantitativement tout équilibre chimique et s'applique ainsi à une vaste gamme de réactions en solution ou en phase gazeuse: dissolution-précipitation, complexation, dissolution ou dégazage de gaz dans l'eau, etc. Si l'on considère une réaction réversible simple se déroulant à température et pression constante:



où A, ..., D les symboles chimiques des espèces réagissant et v_A , ..., v_D les coefficients stœchiométriques de ces composés dans la réaction.

A l'équilibre, la distribution des différentes espèces vérifie la relation suivante :

$$K(T, p) = \prod_i (S_i)^{v_i} = \frac{(C)^{v_C} (D)^{v_D}}{(A)^{v_A} (B)^{v_B}} \quad (\text{I.2})$$

avec (A), (B), ..., ou (S_i) les activités des différentes espèces chimiques participant à la réaction, v_A , v_B , ..., v_i leurs coefficients stœchiométriques respectifs ($v_i > 0$ pour les produits de la réaction et $v_i < 0$ pour les réactifs) et K la constante d'équilibre indépendante de la composition de la solution, mais dépendante de la température et de la pression.

Dans les solutions aqueuses, les espèces chimiques dissoutes ne sont pas dans leur état standard. Cet écart à l'idéalité est traité au moyen de modèles de correction de l'activité. Pour les solutions relativement diluées, les modèles les plus largement utilisés sont issus de la théorie développée par Debye-Hückel (1923), faisant intervenir la force ionique I du système et donc, les concentrations de toutes les espèces du système.

D'un point de vue thermodynamique, la constante d'équilibre d'une réaction peut être reliée à la variation d'enthalpie libre, (ou énergie de Gibbs notée ΔG^0), d'enthalpie (ΔH^0) et d'entropie (ΔS^0) de la réaction. Pour toute réaction chimique, la variation d'enthalpie libre, ou énergie de Gibbs, s'écrit :

$$\Delta G_r = \Delta G_r^0 + RT \ln \frac{(C)^{V_C} (D)^{V_D}}{(A)^{V_A} (B)^{V_B}} \quad (\text{I.3})$$

Où ΔG_r^0 (kJ/mole) est l'enthalpie libre standard (1 atm, 25°C), R la constante des gaz parfaits ($8.314 \cdot 10^{-3} \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$), T la température absolue (K).

L'équilibre chimique du système est atteint lorsque les énergies libres relatives aux réactifs compensent celles relatives aux produits de la réaction. Cela se traduit par une valeur minimale de l'énergie de Gibbs ($\Delta G_r = 0$). On a donc :

$$\ln K = -\frac{\Delta G_r^0}{RT} \quad (\text{I.4})$$

$$\Delta G^0 = \Delta H^0 - T\Delta S^0 \quad (\text{I.5})$$

L'enthalpie libre constitue un outil puissant pour visualiser l'écart à l'équilibre d'une réaction chimique et prédire, grâce au terme entropique, le sens d'évolution des processus. Ainsi, pour une réaction se déroulant à P et T constante :

- si $\Delta G > 0$ alors la réaction se fera spontanément jusqu'à atteindre l'équilibre
- si $\Delta G < 0$, la réaction sera thermodynamiquement impossible dans les conditions du système
- si $\Delta G = 0$, l'équilibre est atteint et le système n'évolue plus

2.1.1.1.2 Calcul de K à toute température

A pression constante, la variation de $\ln K$ avec la température se déduit de la relation de base suivante (relation de Van't Hoff) :

$$\left(\frac{\partial \ln K}{\partial T} \right)_p = \frac{\Delta_r H^0}{RT^2} \quad (\text{I.6})$$

Avec T, la température absolue (K), R la constante des gaz parfait et $\Delta_r H$, la variation d'enthalpie de la réaction qui peut être calculée à partir des enthalpies de formation des différents composés disponibles dans des tables de données thermodynamiques :

$$\Delta_r H^o = \sum \nu_i \Delta_f H^o_i \quad (I.7)$$

Avec $\Delta_f H^o_i$, l'enthalpie de formation du composé i à 25°C, 1 atm que l'on nomme enthalpie de formation standard.

Après intégration de l'expression (6), et en considérant en première approximation que $\Delta_r H^o$ est indépendante de la température, dans un intervalle de température proche de $T_0 = 298 \text{ K}$ (Stumm et Morgan, 1992), on obtient :

$$\log K(T) - \log K(T_0) = \frac{-\Delta_r H^o}{R \ln 10} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \quad (I.8)$$

Il découle de la relation ci-dessus que pour une réaction exothermique ($\Delta_r H^o < 0$), la valeur de K diminue avec l'augmentation de la température (la pente $d_{\ln K}$ en fonction de la température est négative) et inversement pour une réaction endothermique ($\Delta_r H^o > 0$). En d'autres termes, les réactions endothermiques (entraînant une perte de chaleur) seront plus rapides lorsque la température sera plus élevée. Dans les mêmes conditions, les réactions apportant de la chaleur (réactions exothermiques) seront plus lentes.

Plus généralement, la loi de Le Chatelier stipule que si l'on tend à modifier les conditions imposées à un système initialement en équilibre stable, celui-ci réagit de façon à s'opposer, en partie, aux changements qu'on lui impose, ce qui tend à le ramener à son état initial.

Dans le cas où les niveaux de température sont plus élevés, il est nécessaire d'intégrer à l'équation (I.8), les contributions des variations de $\Delta_r H^o$ à partir de la relation suivante (Loi de Kirchhoff) :

$$\frac{\partial(\Delta_r H^o)}{\partial T} = \Delta_r C_p = \sum \nu_i C_{p_i} \quad (I.9)$$

Où C_p étant les capacités calorifiques des espèces i mises en jeu par la réaction

2.1.1.2 Incidence sur la solubilité des phases minérales

Considérons la réaction chimique suivante entre une solution aqueuse et un minéral :



Avec $M_n X_m(s)$, la phase solide et $M_{(aq)}$ et $X_{(aq)}$ les espèces chimiques en solution

On appelle indice de saturation, noté IS, la relation qui permet d'apprécier l'état de saturation de la solution par rapport à un minéral :

$$IS = \log \frac{PAI}{K(T)} \quad (I.11)$$

Avec PAI, le Produit d'Activité Ionique des ions entrant dans la composition du minéral ($\prod a_i^{v_i}$) et K(T), la constante d'équilibre thermodynamique de la réaction.

Cette approche de l'écart à l'état d'équilibre fournit des indications sur la nature des phases minérales susceptibles d'être précipitées ou dissoutes au contact de la solution.

Ainsi, si $IS = 0$, la solution se trouve à l'équilibre avec le minéral. Lorsque $IS < 0$ ou $IS > 0$, la solution est, respectivement, sous-saturée ou sur-saturée et capable de dissoudre ou précipiter le minéral.

L'influence de la température est variable suivant la nature des phases minérales considérée. Il est possible de regrouper les minéraux en deux catégories :

- les minéraux à solubilité **prograde**, tels que, par exemple, la calcédoine et le quartz (Figure 6), pour lesquels les constantes d'équilibres s'accroissent avec la température et une tendance à la dissolution en résultera.
- les minéraux à solubilité **rétrograde**, qui présentent une solubilité inverse en fonction de la température (Figure 7). Il s'agit, par exemple, du cas des minéraux carbonatés (aragonite, calcite, dolomite, rhodochrosite, sidérite..), pour lesquels une hausse de température du système se traduira par une élévation des indices de saturation et, dans certains cas, par l'apparition de dépôts de sels carbonatés afin de compenser cette instabilité.

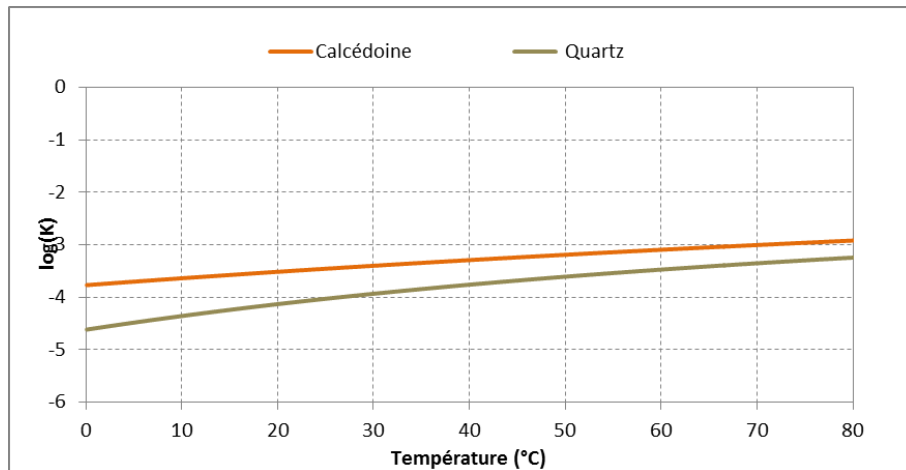


Figure 6 : Variations des constantes d'équilibre pour deux minéraux à solubilité prograde

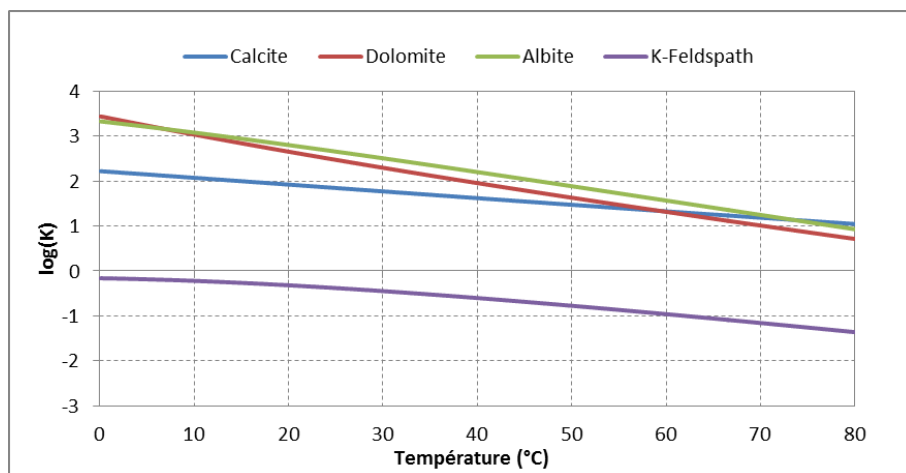


Figure 7 : Variations des constantes d'équilibre pour quatre minéraux à solubilité rétrograde

2.1.1.3 Incidence sur la solubilité des gaz dissous

Pour des solutions suffisamment diluées et pour des pressions faibles, la loi de Henry établit la relation de proportionnalité entre la pression partielle d'un gaz dans la phase gazeuse et sa concentration dans la phase aqueuse à l'équilibre selon :

$$C_A = K_{H(T,p)} \cdot P_A \quad (\text{I.12})$$

où P_A est la pression partielle (ou la fugacité) de l'espèce A dans la phase gazeuse, C_A la concentration de l'espèce A dans la phase liquide et K_H le coefficient de solubilité ou constante de Henry ($\text{mol.L}^{-1}.\text{atm}^{-1}$).

Pour une pression partielle P_A donnée en gaz,

- Si $P'_A > P_A$, le gaz passera de la phase gazeuse à la phase liquide et le passage se fera en sens inverse si $P'_A < P_A$.

- Si $P'_A = P_A$, cette solution sera en équilibre avec la phase gazeuse

La constante de Henry est assez peu sensible à la pression (Michard, 2002), mais dépend fortement de la température, comme en témoignent les exemples de l'oxygène ainsi que du dioxyde de carbone ci-dessous (Figures 8 et 9).

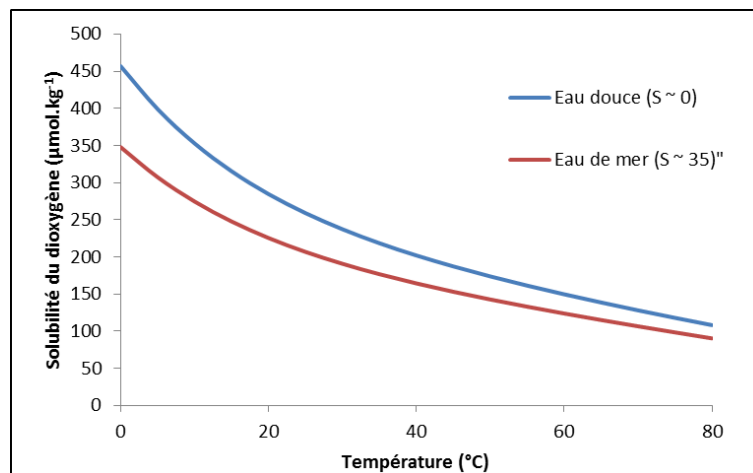


Figure 8 : Solubilité de l'oxygène en fonction de la température et de la salinité S (g/L) pour une pression partielle d'oxygène de 0,2 atm (d'après l'algorithme proposé par Benson et Krause, 1984)

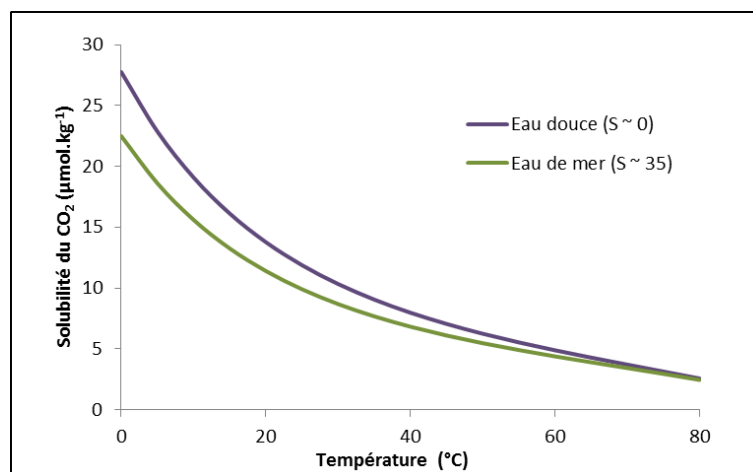


Figure 9 : Solubilité du dioxyde de carbone en fonction de la température et de la salinité S (g/L) pour une pression partielle de $3.6 \cdot 10^{-4}$ atm (Stumm et Morgan, 1996)

Le maximum de solubilité de l'oxygène est observé au voisinage de 0 °C ($457 \mu\text{mol.kg}^{-1}$ pour $S=0$) et la concentration chute de 50% à 35°C ($218 \mu\text{mol.kg}^{-1}$ pour $S=0$). De par sa forte réactivité biologique, l' O_2 revêt d'une importance particulière pour les processus biologiques (*i.e.* dégradation de la charge organique). Sa disparition peut faire basculer le système en

conditions anoxiques, qui peut se révéler préjudiciable dans certains cas, au regard de la qualité de la ressource (mise en solution et/ou relargage d'éléments délétères).

2.1.14 Incidence sur les cinétiques réactionnelles

Dans la plupart des cas, une augmentation de température entraîne une hausse de la vitesse d'une réaction chimique du fait de l'augmentation de l'énergie d'agitation des molécules qui augmente l'intensité et la fréquence des collisions entre les réactifs. La loi d'Arrhenius ci-dessous permet de décrire la variation de la vitesse de réaction en fonction de la température :

$$k = Ae^{\frac{-E_a}{RT}} \quad (\text{I.13})$$

Avec : R : la constante des gaz parfaits

E_a : l'énergie d'activation d'Arrhenius

A : facteur pré-exponentiel tenant compte de la fréquence des collisions et des effets stériques

L'ordre de grandeur habituel du phénomène est un doublement de la vitesse de réaction lorsque la température augmente d'une tranche de 10 °C.

2.1.1.5 Incidence sur les équilibres acido-basiques

Dans le cas de l'eau, la figure ci-dessous illustre l'évolution du log K de dissociation de l'eau avec des températures croissantes. On constate ainsi que la valeur de la neutralité (*i.e* déplacement de la neutralité vers des valeurs de pH plus basses) diminue en réponse à une augmentation de la température du milieu. Le pH de neutralité passe ainsi de 7,47 à 0°C à 6,1 pour une température de 100°C.

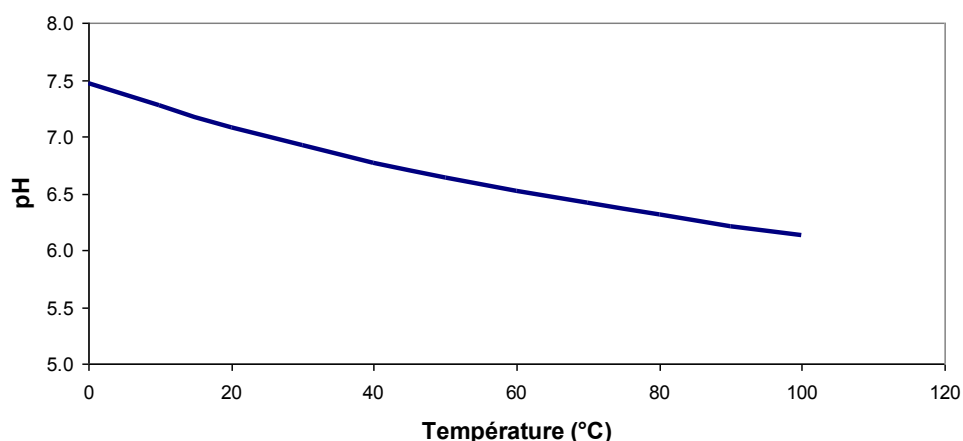


Figure 10 : Variation du pH de neutralité (concentrations équivalentes en H^+ et OH^-) en fonction de la température pour une eau pure ($I=0$) à 1 atm. (Figure obtenue à l'aide du code de calcul PHREEQC)

Le pH, tout comme le potentiel redox, joue un rôle fondamental dans les équilibre de précipitation /dissolution des éléments chimiques. Une diminution du pH peut entraîner une solubilité plus importante de certains éléments, tels que les ions métalliques par exemple.

2.1.1.7 Incidence sur la solubilité des phases organiques

Généralement, la solubilité des polluants est tributaire des variations de température avec une tendance marquée à une augmentation de la solubilité, comme en témoignent les exemples du naphtalène (Figure 11a), du 1,3,5-Trichlorobenzène et du 1,4-Dichlorobenzène (Figure 11b) qui correspondent à des polluants organiques rencontrés dans les eaux souterraines.

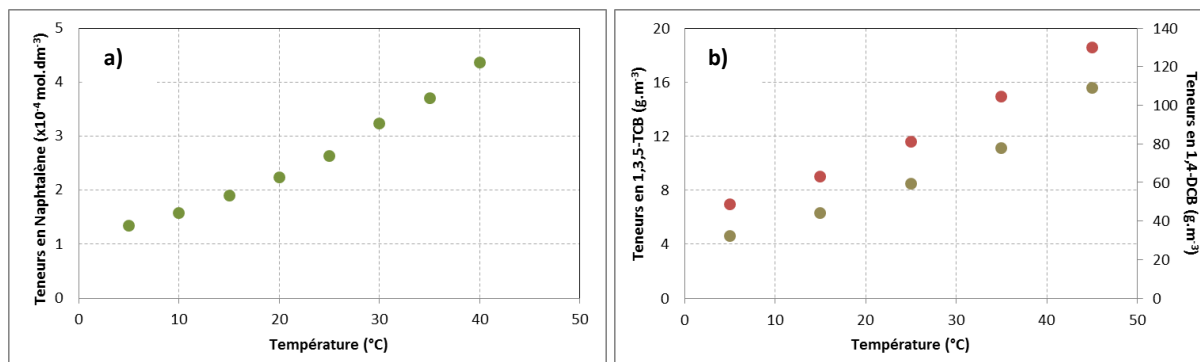


Figure 11 : Evolution de la solubilité en fonction de la température du Naphtalène (a), du 1,3,5-TCB et du 1,4-DCB (b) (Shiu et al., 1997 ; Perez-Tejeda et al., 1990)

2.1.1.8 Incidence sur les processus de sorption-désorption

Les processus de sorption impliquent un grand nombre de phénomènes (adsorption, échanges d'ions, absorption, chimiosorption) qui affectent la distribution des composés chimiques entre les différentes phases des systèmes de sub-surface. Ces mécanismes d'interface particule-soluté, en particulier la sorption et la désorption, jouent un rôle important dans la mobilité (immobilisation relargage) des polluants, qu'ils soient organiques ou inorganiques.

La relation à l'équilibre entre les concentrations en polluants en solution et la teneur sorbée dans la fraction solide du sol sont fondées sur des modèles descriptifs du type (isotherme de Langmuir, Freundlich, modèle K_d) :

$$C_s = f(C_{aq}) \quad (I.14)$$

Où C_s est la concentration du contaminant dans la phase solide et C_{aq} est la concentration du contaminant en solution.

Sans entrer dans des considérations fastidieuses, il convient de souligner que la répartition d'un élément entre la phase liquide/solide dépend de nombreux facteurs, tels que le pH, la nature de la phase solide et de l'élément considéré, du nombre de site de fixation, des cinétiques d'adsorption, de la présence d'effet de compétition,... En ce qui concerne l'influence de la température, il est souvent reporté que les processus de sorption sont généralement exothermiques ($\Delta H^0 < 0$), du moins pour les composés organiques (Ten Hulscher et Cornelissen, 1996 ; Davis *et al.*, 1997). Cela signifie qu'une augmentation de la température s'accompagne, à l'équilibre, d'un relargage d'une partie des quantités de polluants sorbés. Certains éléments traces, tels par exemple que le Cu, Zn, Cd et Pb, montrent la même tendance au niveau de sédiments détritiques (Serpaud *et al.*, 1994), mais il apparaît difficile de dégager une tendance applicable à tout type d'échangeur (matière organique, carbonate, oxyde de fer, phases argileuses). Les conséquences d'une augmentation de température au niveau des processus de sorption-désorption doivent être ainsi appréciées en fonction de la nature du système (nature des polluants et des phases solides, ...etc).

2.1.2 Influence de la température sur les microorganismes

2.1.2.1 Généralités

La croissance et l'activité métabolique des micro-organismes sont intimement liées à la température. La croissance microbienne dans un milieu stérile est souvent illustrée par la forme générale de la courbe d'Arrhenius. Chaque espèce bactérienne est caractérisée par une gamme de température distincte, délimitée par des températures minimales et maximales de croissance, auxquelles vient s'ajouter une température optimale de croissance. En fonction de ces températures dites cardinales (Chapelle, 2001), on distingue schématiquement diverses catégories de microorganismes :

- Les bactéries psychrophiles, qui possèdent de faibles températures cardinales avec une température optimale de croissance située aux environs de 10 °C, mais elles peuvent se développer à des températures proches de 0 °C, voire en deçà.
- Les bactéries psychrotrophes ont une température optimale de multiplication de 20 à 25 °C, mais elles peuvent également croître à de faibles températures.
- Les bactéries mésophiles, qui tolèrent des températures comprises entre 20 et 40 °C. Il s'agit du cas de la plupart des agents pathogènes pour l'homme (adaptation à la température corporelle de l'hôte).

- Les bactéries thermophiles et hyperthermophiles capables de se développer à des températures supérieures à 50°C. A noter que l'illustration ne mentionne pas le cas des thermophiles « extrêmes », capables de se développer jusqu'à des températures proche de 120°C (Kashefi et Lovley, 2003).

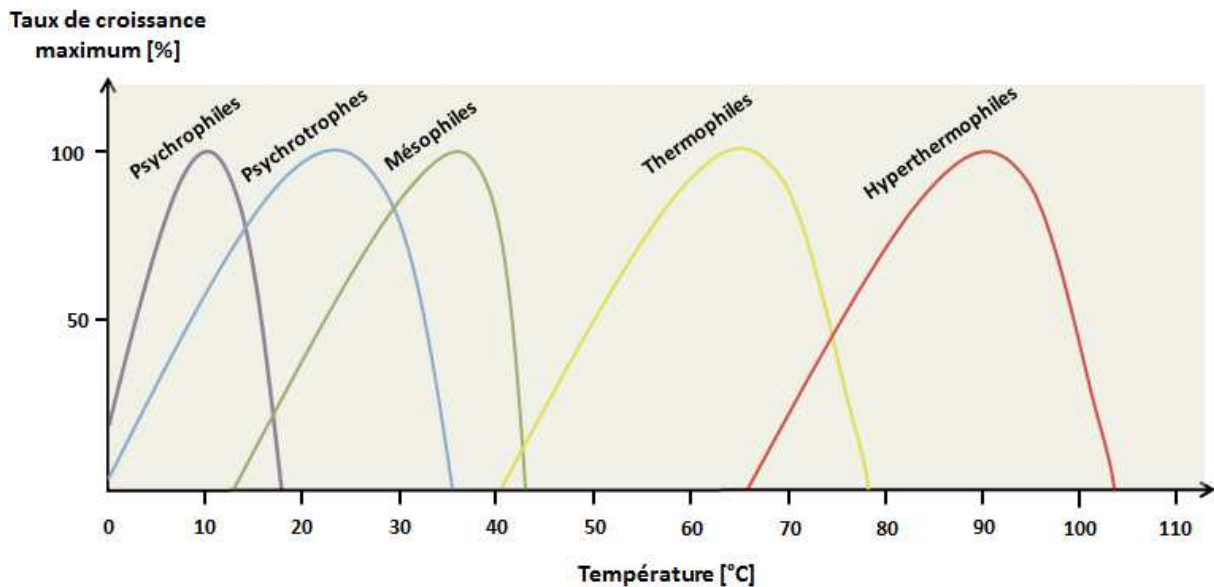


Figure 12 : Courbe de croissance des différentes catégories de microorganismes en fonction de la température

L'augmentation de la température va également contribuer à accélérer les cinétiques biologiques, avec pour corollaire, une stimulation des phénomènes conséquents à cette activité métaboliques, dont la nature est variable selon le contexte considéré (dégradation de matière organique, production de gaz dissous, solubilisation des composés délétères, etc).

2.1.2.2 Germes pathogènes

Les eaux souterraines peuvent être le siège d'infection(s) par trois types de microorganismes : bactéries, virus, et les protozoaires. Ils peuvent exister à l'état naturel mais sont la plupart du temps le résultat d'une contamination par les matières fécales d'origine humaine ou animale. Les études portant sur la survie des microorganismes pathogènes dans les eaux souterraines sont relativement peu nombreuses dans la littérature. Les aquifères ont longtemps été considérés comme exempts de toute contaminations microbienne ou chimique typiquement retrouvée dans le compartiment de surface.

La température conditionne la prolifération et la virulence des bactéries pathogènes. Pour les bactéries pathogènes obligatoires, la température optimale de croissance se limite à une plage étroite voisine de 37°C, correspondant à la température corporelle de leur hôte. Les bactéries pathogènes opportunistes (ex : *P. aeruginosa*, *L. monocytogenes*, ...), capables de tolérer de larges gammes de température, du fait de leur caractère ubiquitaire, voient en général leur activité augmentée lorsque la température croît.

Dans ce contexte, il apparaît fondamental de déterminer si les variations de température des eaux souterraines sont de nature à assurer la survie et la prolifération des bactéries pathogènes pour l'homme lorsque la température des eaux souterraines est amenée à se rapprocher de cet intervalle « critique » de température.

2.2 Synthèse des principaux travaux de recherches

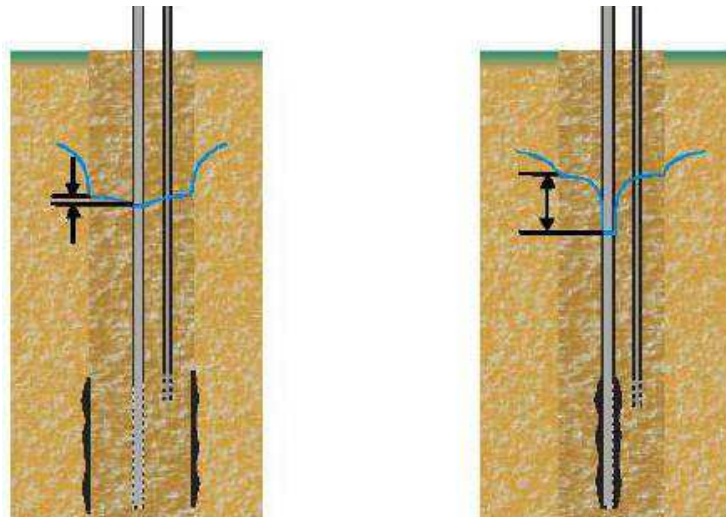
2.2.1 Incidence au niveau de la productivité des ouvrages

2.2.1.1 Généralités sur les processus de colmatage

Le colmatage désigne l'ensemble des phénomènes qui interviennent dans la modification des propriétés filtrantes d'un milieu. Il se traduit (i) pour les forages d'exploitation, par une diminution au cours du temps du débit spécifique caractéristique et, (ii) pour les forages d'injection, par une augmentation de la pression de réinjection à un flux constant. D'un point de vue phénoménologique, le colmatage résulte d'un ensemble de processus physiques, chimiques et biologiques (van Beek *et al.*, 2009), en étroite interactions les uns avec les autres, qui sont décrits succinctement dans les paragraphes suivants :

2.2.1.1.1 Processus mécanique et physico-chimique

Il s'agit principalement du colmatage mécanique par l'entraînement de particules qui affecte en général, l'environnement immédiat du puits, au niveau de l'interface aquifère-massif filtrant et de l'interface massif filtrant-crépines, comme schématisé en figure 13, dans le cas d'un puits de production.



Interface aquifère- massif filtrant

Interface massif filtrant - crépines

Figure 13 : Illustration des deux principales localisations des phénomènes de colmatage liées au transport de particules en suspension.

Le taux de colmatage dépend de nombreux facteurs intrinsèques au milieu poreux (distribution granulométrique, proportion de particules fines, arrangements des grains, etc), des conditions hydrodynamiques (Mays et Hunt, 2004) et de la taille des particules transportées par le flux de convection qui va régir le mode de dépôts. D'après Herzig *et al.* (1970), il est possible de distinguer deux modes de réduction de la porosité par les dépôts de particules en suspension :

- les dépôts purement mécaniques, dans le cas de particules de grosses tailles ($> 30\mu\text{m}$) pour lesquels les effets de masse et de volume sont prépondérants.
- les dépôts par effet de surface (adsorption), dans le cas de particules fines (diamètre inférieure à $1\mu\text{m}$), lorsque les forces attractives sont dominantes.

Les opérations de développement, qui précèdent la mise en fonctionnement des ouvrages, permettent en principe d'éviter l'apparition du colmatage. Elles consistent à éliminer les particules fines de la formation et de stabiliser le massif filtrant, de manière à éviter tout risque d'ensablement, du puits ou toute détérioration des équipements (pompes, crépines, etc).

Le colmatage peut également résulter, dans le cas des puits d'injection, de la formation de bulles de gaz induits par le dégazage de l'eau (CO_2 , CH_4 , H_2S , ..) et/ou entrainement d'air lorsque le circuit n'est pas totalement hermétique, pouvant conduire à des changements d'oxydoréduction et acido-basiques tels qu'un colmatage devient très rapide.

2.2.1.1.2 Interactions entre l'eau injectée et la formation

Le principal mécanisme à l'origine de la survenue de phénomène de réduction de la perméabilité concerne le gonflement et la dispersion des phases argileuses. Ce phénomène a été identifié depuis des décennies par les pétroliers (réinjection de saumure), lors des opérations de foration, des études menées sur la recharge artificielle des aquifère (Olsthoorn 1982), ou encore lors de l'exploitation de doublets géothermiques. Il concerne exclusivement les ouvrages de réinjection.

Les caractéristiques structurales des minéraux argileux (structure en feuillets, grande surface d'échange et la présence de nombreux ions entre ces feuillets) expliquent leur comportement face aux variations de la composition de l'eau injectée. Hormis les effets liés au pH, la nature et le contenu des électrolytes dans l'eau de réinjection influencent les mécanismes d'hydratations de l'argile : en présence d'une solution de concentration en électrolyte suffisamment faible, les cations interfoliaires vont adsorber des molécules d'eau, augmentant l'épaisseur de l'espace interfoliaire et entraînant ainsi le phénomène de « gonflement » des argiles pouvant même conduire dans certains cas à une défloculation (délitage de la fraction argileuse). Le degré d'endommagement dépend de la nature et la proportion des argiles présentes dans la formation et les qualités physico-chimiques de l'eau infiltrée ou injectée.

Outre l'influence de la force ionique du fluide de réinjection, les capacités d'extension de l'espace interfoliaire sont également fonction de la nature des cations présents entre les feuillets (Degallier, 1987). Ainsi, la présence de cations bivalents entre les feuillets argileux (Ca, Mg) augmente les forces d'attraction entre les feuillets et réduit les phénomènes d'hydratations des argiles. En revanche, la présence d'ions monovalents tels que le sodium, possédant une énergie d'hydratation élevée, induit le phénomène de gonflement pouvant à plus ou moins long terme, selon la proportion d'interstratifiés dans la formation, obstruer les voies d'écoulement.

En général, l'évaluation du risque de gonflement et de dispersion des particules argileuses est déterminée en ayant recours à l'indice SAR (sodium-adsorption-ratio).

2.2.1.1.3 Formations de dépôts

Les deux principaux phénomènes pouvant induire la formation de dépôts colmatant sont le dégagement de CO₂ et l'apport d'O₂. Le premier entraîne un déplacement du pH vers les

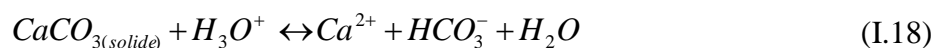
valeurs basiques et, de ce fait, la précipitation des carbonates et le second, le déplacement de l'équilibre redox entre fer bivalent et trivalent, qui conduit à la précipitation d'hydroxydes ferriques.

Dépôts carbonatés

Les études de l'équilibre carbonique des eaux se sont développées depuis de longue date, surtout dans le but de prévenir l'entartrage des chaudières et des conduites. L'incrustation ou l'entartrage des forages par des carbonates a fait également l'objet de nombreuses études et l'on sait maintenant comment minimiser la survenue de tels phénomènes.

L'étude de la solubilité des carbonates, en particulier les polymorphes de la calcite (CaCO_3), est complexe, puisque les équilibres chimiques sont contrôlés par de nombreux facteurs, comme la température, de la pression de la solubilité des gaz dissous, notamment le CO_2 , et les équilibres acido-basiques. Par ailleurs, ce phénomène revêt d'une importance particulière puisque de nombreuses eaux sont naturellement saturées voire légèrement sursaturées vis-à-vis des carbonates. La description des phénomènes est illustrée au travers de l'exemple de la calcite, qui représente généralement la phase la plus stable et la plus abondante dans les eaux naturelles.

Afin de faciliter la compréhension des phénomènes, on peut décrire le système carbonate par la série d'équation suivante :



L'ensemble de ces relations montrent clairement l'action conjointe du CO_2 et du pH sur la solubilité de la calcite. Les réactions I.15 à I.17 rendent compte de l'influence du CO_2 sur le pH de l'eau. Grâce aux constantes associées à chacune de ces réactions, il est possible de calculer la répartition des différentes espèces en fonction du pH de l'eau, reportée sur la figure 14. De plus, la solubilité de la calcite s'accroît lorsque la concentration en CO_2 augmente, via

le déplacement de l'équilibre (I.18) vers la droite, consécutif à la diminution de pH (équations I.15 à I.18).

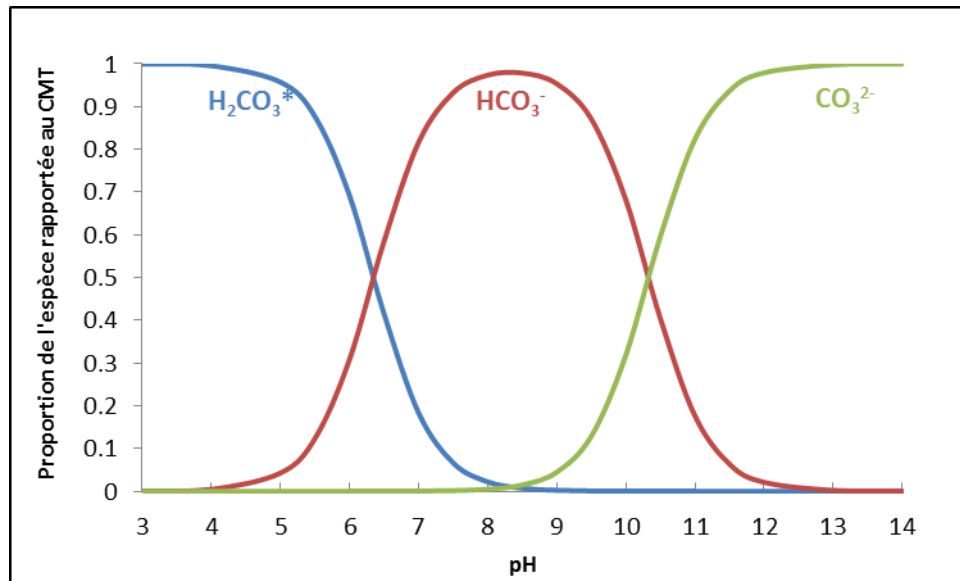


Figure 14 : Répartition des espèces carbonatées en solution en système fermé en fonction du pH à 25°C et pour une concentration totale en carbone inorganique dissous de 0,1 mol.L⁻¹ (calcul effectué à partir des valeurs de pKa et des fractions ioniques des différentes espèces, tirées de Stumm et Morgan, 1996).

La solubilité des carbonates est donc régie par l'influence combinée de la quantité de CO₂ dissous et du pH. D'une manière générale et très simpliste, plus le pH est élevé et plus les phénomènes de précipitation sont à redouter. Les outils de calculs numériques permettent d'apprécier, avec un degré de précision satisfaisant, les propriétés de l'eau vis-à-vis des phénomènes de dépôts.

Les eaux souterraines étant, en générale, largement sursaturées en CO₂, l'apparition de dépôts intervient principalement lorsqu'un dégazage du fluide se produit, notamment au cours de la phase d'extraction de l'eau du milieu souterrain.

D'après Degallier, les fortes vitesses de circulation de l'eau à l'approche du massif de gravier ou à travers les fentes des crépines, seraient à l'origine d'un phénomène de cisaillement important également responsable de l'exsolution des gaz dissous, en particulier le CO₂.

Dépôts d'oxy-hydroxydes de fer

Les nappes d'eau souterraines superficielles peuvent renfermer, en particulier dans le cas de milieux dépourvus d'oxygène (conditions réductrices), des concentrations en fer dissous (Fe^{2+} libre ou ses espèces dissoutes) susceptibles d'induire des phénomènes de précipitation lorsqu'un apport d'oxygène est exercé dans le système ou lors d'un mélange d'eau de composition différente. Ceci peut conduire à des phénomènes de colmatage à différents niveaux (échangeur de chaleur, puits, aquifère).

D'après le diagramme de stabilité du fer (Figure 15), on constate qu'une augmentation du pH (passage de A à B) et/ou du potentiel redox (passage de A à C) d'une eau initialement légèrement réduite, montre une tendance favorable à faire évoluer le fer en solution vers une forme insoluble telle que l'hydroxyde de fer, notée $\text{Fe}(\text{OH})_3$. Ce diagramme ne tient pas compte de l'effet temporel, lié aux cinétiques des réactions (approche à l'équilibre) mais la réaction chimique d'oxydation à des pH proches de la neutralité, est extrêmement rapide (Davison et Seed, 1983).

A noter que d'autres facteurs interviennent plus ou moins directement dans la solubilité du fer comme par exemple l'influence de la concentration en CO_2 dissous, de la température, de la présence de ligands organiques, de la concentration en fer ou encore de la force ionique.

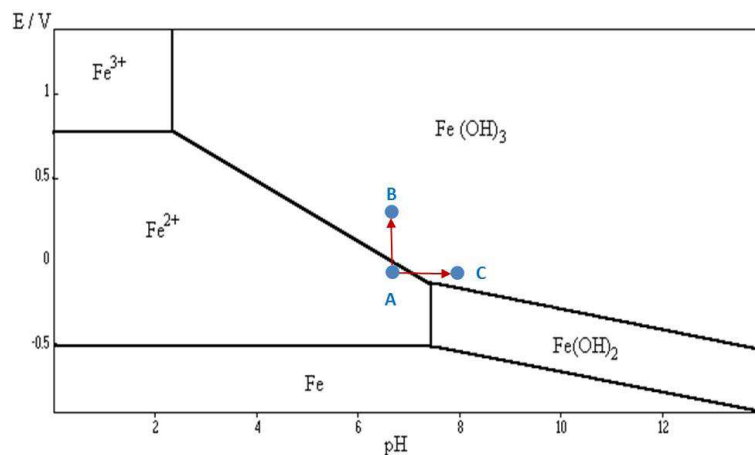


Figure 15 : Diagramme de Pourbaix (pH versus E_H) des espèces du fer (concentration totale des espèces dissoutes = 10^{-3} M , température = 25°C).

2.2.1.1.3 Colmatage biologique

La zone située aux voisinages immédiats des ouvrages (fentes des crépines, massif de gravier) constitue un milieu particulièrement propice au développement des microorganismes (Cullimore, 2000). Le renouvellement et l'apport continu de substances nutritives (matière organique, sels minéraux) permet le développement d'une activité métabolique optimale, pouvant conduire, dans certains cas de figure, à une expansion conséquente de la biomasse sous forme de biofilm qui aboutit, après une phase de maturation de la structure tridimensionnelle, à une réduction de la conductivité hydraulique. La présence de matière organique dans les eaux est souvent un facteur déterminant dans l'évolution du phénomène (Hijnen et Van der Koou, 1992). De par ses propriétés de surface, le biofilm piège dans sa structure des éléments métalliques, tels le fer ou le manganèse, donnant ainsi une couleur aux dépôts gélatineux (dans la gamme de l'orange, rouge, brun à noir). Le type de microorganismes impliqués dans de tels événements varie considérablement suivant le contexte local mais, d'une manière générale, on retrouve fréquemment les bactéries associées au cycle du fer ou du manganèse, telles que par exemple les espèces appartenant au genre *Leptothrix*, *Crenothrix*, *Hyphomicrobium*, *Siderocapsa* et *Metallogenium* (Mouchet, 1992). L'ensemble de ces phénomènes de colmatage est regroupé dans la littérature sous les termes de « biofouling » ou « plugging », le terme « clogging » étant réservé aux processus de colmatage dominé par des facteurs physiques et/ou chimiques.

Si le rôle déterminant des microorganismes dans l'oxydation du fer en milieu acide est parfaitement avéré (e.g drainage minier acide), leurs implications catalytiques dans l'oxydation du fer par l'oxygène dissous à des pH proches de la neutralité demeure toujours un sujet de controverse (Fortin, 2004), compte tenu de la rapidité des cinétiques chimiques. Il semblerait que l'action des microorganismes soient significatives par rapport aux processus d'oxydation spontanée, pour de très faibles teneurs en oxygène (condition de micro-aérophilie ; Ralph et Stevenson, 1995).

En ce qui concerne l'oxydation du manganèse en milieu proche de la neutralité, les processus biologiques sont considérés comme largement dominants.

2.2.1.2 Synthèse des retours d'expériences au niveau d'installations

Les principaux résultats illustrés dans ce paragraphe sont issus de travaux portant sur le stockage d'énergie thermique en aquifère (ATES = Aquifer Thermal Energy Storage), mettant

en œuvre des températures de réinjection d'eau parfois élevées (de 25°C à plus de 100°C). Ces résultats seront utilisés, dans le cadre de cette étude, comme référence pour décrire comportement du réservoir et de l'installation face aux sollicitations thermiques.

Les problèmes d'exploitation les plus souvent recensés (Annexe 1) concernent les phénomènes de dépôts et de colmatage induits par la précipitation de carbonates ainsi que d'oxy-hydroxydes de fer et de manganèse au niveau des ouvrages d'exploitation (crépines, massif de gravier), ainsi qu'au niveau des équipements constitutifs du circuit reliant les deux têtes de puits (conduites, échangeurs thermiques).

La précipitation des espèces carbonatées, consécutive à l'apport de chaleur, couplé ou non à une exsolution de CO₂ (diminution de la solubilité avec la température), est fonction du profil initial des eaux et des niveaux de températures appliqués. La plupart des auteurs estiment que l'occurrence de ce phénomène peut être considérée comme négligeable pour des températures de réinjection inférieures à 40°C (Jenne *et al.*, 1992), les situations problématiques ayant généralement été décelées pour des températures de réinjection supérieures à 80°C.

En revanche, la précipitation d'oxyde et d'hydroxyde de fer ou de manganèse est communément reportée pour des températures inférieures à 40°C. Elle est essentiellement liée à un défaut de conception des installations (apport d'oxygène dans le système) ou à des phénomènes de mélange d'eau (Palmer et Cherry, 1984) dans le cas où le pompage et la réinjection se font dans des réservoirs aquifères distincts. L'ampleur du phénomène s'accroît avec l'augmentation des teneurs en fer dissous dans le réservoir. Parmi les nombreux cas de figure existant, la présence de bactéries, impliquées dans les processus d'oxydation et de bio-précipitation, est fortement suspectée ou avérée.

Les autres processus à l'origine de la survenue de désagréments sont listés ci-dessous, par ordre d'importance :

- colmatage lié à l'entraînement de particules, conduisant à un ensablement progressif des ouvrages et une détérioration des équipements (abrasion).
- corrosion électrochimique : les cas les plus sévères sont liés à la présence de fortes teneurs en chlorure, en H₂S, en sulfates, pour des pH acides, et lorsque que des traitements particuliers (*e.g* acidification) sont appliqués.

- colmatage lié au gonflement et la dispersion des argiles, dans le cas où il existe un déséquilibre entre l'eau injectée et la formation aquifère (adoucissement de l'eau avant sa réinjection et traitements divers)

2.2.2 Influence au niveau des communautés microbiennes

2.2.2.1 Impacts au niveau de la microflore indigène

Etant donné que les eaux souterraines abritent principalement des microorganismes psychrophiles et psychrotolérants, l'effet prédictible d'une augmentation de température est une augmentation de la proportion de bactéries dont la température optimale de croissance est proche de celle du puits d'injection, représentés notamment par les populations mésophiles. Si la modification de température *in situ* n'est pas très importante (température maximale inférieure à 40°C, dans le cas des aquifères de subsurface) et si le système est isolé, les modifications à petites échelle pourraient être facilement réversibles et les conséquences faibles, voire inexistantes. En revanche, si les perturbations thermiques sont durables, les conséquences pourraient être plus problématiques. On assiste, ces dernières années, à un engouement et une réflexion profonde sur le thème de la résistance des écosystèmes aux perturbations induites par les facteurs anthropiques en relation avec les services rendus (sur le plan fonctionnel). On considère habituellement qu'un écosystème est d'autant plus stable qu'il est diversifié. Cette diversité, considérée comme un réservoir d'espèces dotées de fonctionnalités différentes, procure à l'écosystème un pouvoir tampon vis-à-vis des variations de l'environnement (Loreau et al. 2001) et, de surcroît, une certaine assurance vis à vis de la stabilité de son fonctionnement biologique (maintien des fonctions qu'il est capable d'accomplir, lutte contre une population invasive,...).

Dans ce contexte, une augmentation durable de la température des eaux serait susceptible d'induire un remaniement des communautés et ainsi favoriser la sélection des certains microorganismes plus compétitifs que d'autres pour s'approprier les ressources affectant ainsi la diversité initiale. Cependant, il est généralement admis qu'un faible niveau de biodiversité peut suffire pour assurer la stabilité des fonctions des écosystèmes. De plus, les communautés bactériennes possèdent une haute redondance fonctionnelle, c'est-à-dire que les fonctions de l'écosystème seront peu affectées par une érosion éventuelle de la biodiversité, certaines espèces étant capable d'assurer une fonction à la place des espèces supprimées (Briellmann et

al, 2009). Ces hypothèses restent toutefois à confirmer dans le cadre d'une démarche expérimentale *in situ*.

La majorité des études menées dans ce domaine ont été réalisées dans les années 90 (Winters, 1992 ; Van Mourick *et al.*, 2004 ; Sowers *et al.*, 2006) en employant des méthodes d'investigations considérées, depuis l'avènement des outils moléculaires, comme parfaitement inadaptées pour caractériser des milieux naturels complexes comme les aquifères. Ces méthodes de microbiologie classique (isolement et culture sur milieux solides) restent, certes encore validées et employées de nos jours pour la détection d'agents pathogènes, mais ne sont pas pertinentes pour l'étude de la microflore globale puisqu'il est admis aujourd'hui que ces méthodes sous-estiment de façon importante la richesse et l'abondance des communautés microbiennes. On estime en effet que la fraction cultivable dans les environnements aquatiques est souvent inférieure 1 % (Ultee *et al.*, 2004 ; Amann *et al.*, 1995 ; Theron et Cloete, 2000).

En ce qui concerne l'incidence sur la biodiversité de l'écosystème, seuls quelques travaux récents ont mis clairement en évidence un changement de diversité des populations bactériennes (Briellmann *et al.*, 2009). Cependant, ce changement de diversité ne semble pas avoir occasionné des changements perceptibles sur le fonctionnement global de l'aquifère et sur son intégrité. Les auteurs concluent que les ressources en éléments nutritifs sont certainement insuffisantes (aquifère oligotrophe) pour favoriser un développement bactérien conséquent.

2.2.2.2 Impacts au niveau de la prolifération d'agents pathogènes

Il existe un large éventail d'agents pathogènes susceptibles d'induire une contamination des eaux souterraines pouvant exister à l'état naturel mais qui sont, la plupart du temps, le résultat d'une contamination par les matières fécales d'origine humaine ou animale (Macler et Merkle, 1999). Les études portant sur la survie des microorganismes pathogènes dans les eaux souterraines sont peu nombreuses dans la littérature. Les aquifères ont dans le passé longtemps été considéré comme exempt de contaminations microbienne typiquement retrouvée en surface (John and Rose, 2005).

Le potentiel de survie des microorganismes exogènes lors de leur transit dans les aquifères est d'une manière générale faible. De nombreux travaux se sont attachés à étudier les causes de

ce déclin mais, en raison de la multiplicité des facteurs mis en jeu, l'appréciation *in situ* demeure délicate. Sans entrer dans des considérations détaillées, il apparaît que des phénomènes d'ordre biologique semblent intervenir de manière importante dans l'auto-épuration des eaux souterraines. Il semblerait en effet que les microorganismes allochtones subissent des actions antagonistes (prédation, compétition pour l'acquisition des ressources) de la part du milieu récepteur, se traduisant par un déclin rapide. Dans ce contexte, la température aurait un effet principalement indirect en stimulant la flore compétitive indigène, réduisant ainsi la survie des microorganismes pathogènes qui deviendraient moins compétitifs dans cet environnement hostile. Des observations similaires ont été constatées dans d'autres écosystèmes tels que par exemple les sols agricoles (Mawdsley *et al.*, 1995) ou dans les eaux de surface (mer, fleuve...).

En complément de ces observations, diverses investigations ont été menées dans le cadre de systèmes de stockage d'énergie thermique en aquifère. Le suivi de la qualité des eaux souterraines sur site lors d'opérations pilotes, ou dans le cas d'installations *in situ*, n'a jamais montré une augmentation des concentrations en bactéries pathogènes et ce, même lorsque des températures de 37°C, supposées « optimales » pour la prolifération de bactéries pathogènes, ont été atteintes. Les organismes recherchés sont soit absents, soit présents en concentration très faible mais aucune étude n'a mis en évidence un développement de bactéries pathogènes (Winters 1992 ; van Mourik *et al.*, 2004).

2.2.3 Conclusions

Après une revue des principaux phénomènes pouvant entraver l'exploitation géothermique des nappes superficielles, il en ressort que les cas de figure développés sont assez variables suivant le contexte spécifique local. Néanmoins, il apparaît que les principales causes à l'origine de désagréments sont assez bien connues et peuvent être prédites et ainsi évitées par un dimensionnement approprié de l'installation (choix des matériaux, ouverture des crépines, débits maximum de production et d'injection, etc), qui présuppose une bonne connaissance du réservoir, complétée si besoin par des investigations préalables au niveau de la nappe (analyse, simulation géochimique).

Cette synthèse bibliographique a permis de montrer que la connaissance des impacts de nature géochimiques était assez avancée, du moins en ce qui concerne les principaux mécanismes

susceptibles d'entraver le fonctionnement des installations. En revanche, un certain nombre d'inconnues subsiste encore à ce jour en ce qui concerne l'influence des fluctuations de température au niveau des équilibres biologiques à l'échelle de la nappe, en relation avec les paramètres géochimiques du milieu. Il faut souligner que l'on ignore à peu près tout de l'influence de la température sur les populations indigènes (modalités de survie, tolérance, etc) et des conséquences au niveau des grands processus biogéochimiques régissant la qualité des eaux souterraines, qui fait référence à l'activité, l'abondance et la diversité des microorganismes participant au fonctionnement de l'écosystème.

De plus, la multiplicité et la complexité des phénomènes mis en jeu, ouvre un large éventail de cas d'espèces possibles et rend difficile d'énoncer des règles applicables à toutes les configurations possibles.

Les questions que l'on se pose à ce sujet ne peuvent être réglées sans avoir recours à des études au cas par cas au niveau d'exploitations réelles. C'est dans ce cadre global de réflexion que la présente étude trouve sa finalité. Le plan de recherche mis en œuvre dans le cadre de cette thèse vise donc à contribuer à la compréhension de l'impact de la température au niveau de la ressource en eau, sur la base de relevés et d'expérimentation sur différents sites d'étude et en laboratoire.

L'approche comportera un suivi physico-chimique au niveau de la nappe, qui reste incontournable, complété par des méthodes de caractérisation du compartiment bactérien, comme des mesures de biomasse, d'activité globale (respiration, activité enzymatique), ou encore de diversité, afin d'apprécier de façon la plus complète, la réponse des microorganismes au changement des conditions thermiques du milieu.

Chapitre II :

Matériels et méthodes

Ce deuxième chapitre présente la méthodologie mise en œuvre pour les parties expérimentales de ce travail. La première partie de ce chapitre est consacrée à la description du dispositif expérimental de percolation en colonnes élaboré dans le cadre de cette étude, incluant les éléments méthodologiques relatifs à la conduite des essais (garnissage des colonnes, caractérisation de l'hydrodynamisme, ...). La seconde partie est dédiée à la description générale des procédures de prélèvement et de mesures mises en œuvre in situ sur les différents sites d'études concernés. La description des champs d'investigations expérimentaux sera détaillée dans les chapitres suivants. La troisième partie décrit sommairement les moyens analytiques employés, pour les mesures en solution aqueuse, la caractérisation des matériaux, ainsi que les méthodes d'analyse en microbiologie. Enfin, la dernière partie précise l'approche adoptée pour le traitement des résultats.

1. Conception d'un dispositif expérimental de percolation en colonnes (Pilote BIOTHERMEX)

1.1 Contexte et enjeux

Un objectif important de cette thèse a porté sur le développement d'un dispositif expérimental permettant de reproduire, dans des conditions maîtrisées et en configuration réaliste de subsurface, les fluctuations de températures et de qualité du fluide induites par les cycles saisonniers de fonctionnement d'une installation exploitant un aquifère superficiel pour des applications de chauffage et de climatisation.

Le concept initial reposait sur la mise au point d'un outil spécifique (cellule ou colonne de percolation) permettant de mimer la circulation du fluide au travers d'échantillons réels sous une pression si possible identique à celle des formations (dans la gamme de 1 à 3 bars) tout en contrôlant les aspects microbiologiques et physico-chimiques *via* des prélèvements et analyses. La présence d'automate(s), permettant de piloter le dispositif et de gérer les paramètres ciblés (température, débit, pression...), ainsi que de centrale(s) d'acquisition autorisant l'enregistrement et l'archivage en permanence des paramètres ciblés, était également envisagée.

Ces travaux à l'échelle pilote visaient principalement à :

- caractériser finement l'effet de la propagation d'un panache thermique dans un modèle réduit d'aquifère (colonne garnie de sédiment) en maîtrisant au mieux les conditions expérimentales.
- appuyer les observations de terrains, rendues délicates par les contraintes inhérentes au milieu souterrain.
- simuler l'influence de différents paramètres (vitesse de circulation, niveau de température...) sur la réactivité du système.

Après avoir exposé brièvement les principaux éléments de réflexions préliminaires, nous présenterons le prototype expérimental conçu et mis en œuvre au laboratoire. Nous aborderons par la suite les modalités relatives à la conduite des essais.

1.2 Base de réflexions

L'objet de ce paragraphe est de présenter quelques éléments de réflexion qui ont précédé la conception du dispositif, principalement orienté sur le choix des matériaux constitutifs, et sur les critères de dimensionnement des colonnes.

1.2.1 Sélection des matériaux (colonne et circuit)

Les propriétés des matériaux constitutifs ont tout d'abord fait l'objet d'une réflexion approfondie, de manière à correspondre aux conditions d'utilisation envisagées et aux impératifs métrologiques.

✓ *Propriétés biologiques*

Le critère de biocompatibilité est essentiel dans le cadre de nos expérimentations. Il convient donc de proscrire les matériaux susceptibles de relarguer des substances toxiques, ainsi que ceux pouvant être sujet à une altération par les microorganismes. De même il convient, dans la mesure du possible, de sélectionner des matériaux défavorables à la formation de biofilm (faible irrégularité de surface, charge de surface globale négative, matériaux hydrophiles) dans le but de limiter les interactions avec le support. Afin d'éviter la prolifération de microorganismes indésirables (algues notamment) dans le cas d'une éventuelle contamination, les matériaux devront être totalement opaques.

✓ *Propriétés physiques (mécaniques, tribologiques)*

Les principales caractéristiques requises sont la résistance à la température (dans une gamme de 10 à 60 °C), à la pression (5 bars maximum) ainsi qu'à la diffusion des gaz (perméabilité). Il faut également prendre en compte la possibilité de pouvoir autoclaver le matériau (121 °C) pour détruire toute présence non contrôlée de microorganismes. La dureté doit être également suffisamment élevée afin de réduire les risques d'usure et d'abrasion éventuelle liée aux frottements.

✓ *Propriétés chimiques.*

Il est fondamental de disposer de matériaux les plus inertes possibles afin de limiter au maximum les interactions avec le fluide pouvant altérer la composition du milieu. La résistance aux acides/bases fortes, aux phénomènes d'oxydation (ex : corrosion) est également indispensable pour garantir la longévité des équipements et permettre de réaliser des procédures de nettoyage/désinfection si nécessaire (stérilisation chimique).

✓ *Modularité*

Les matériaux doivent en effet offrir une certaine souplesse d'utilisation afin de supporter les modifications et les réparations du circuit au cours des essais.

✓ *Bilan*

D'un point de vue pratique, il n'existe pas de matériau idéal pouvant satisfaire à toutes ces exigences. Le verre, par exemple, répond à la plupart des conditions listées ci-dessus et présente l'avantage de permettre l'observation du déroulement de la réaction mais son manque de modularité et sa fragilité en font un mauvais candidat dans l'élaboration du dispositif. Certaines exigences ont donc été assouplies et le choix de l'acier inoxydable est apparu comme le meilleur compromis (Tableau 1).

Tableau 1 : Comparatif de différents matériaux sur la base des critères énoncés ci-dessus (modifié d'après Dupraz (2008))

Type de matériau	Neutralité biologique	Propriétés physiques	Propriétés chimiques	Flexibilité
Verre	+++	+++	+++	-
Acier inoxydable	++	+++	+++	++
Polymères	++	+	++	+++

+++ excellent; ++ bon; + variable; - mauvais

1.2.2 Dimensionnement des colonnes

Le dimensionnement de la colonne débute par la détermination de son diamètre. Il est communément admis qu'une colonne doit posséder une section de passage (diamètre interne) d'au moins dix fois supérieure au diamètre de la plus grosse particule du matériau soumis à l'essai (Piantone *et al.*, 2000). De façon analogue, la colonne doit avoir également une hauteur minimum de 40 à 60 fois le diamètre de la plus grosse particule. Ces recommandations générales visent principalement à limiter les effets de paroi, susceptibles de modifier sensiblement la configuration de l'écoulement.

Un autre aspect du dimensionnement se rapporte au volume poral, correspondant au volume occupé par l'espace de vide entre les particules solides. Celui-ci doit être en effet suffisamment grand pour permettre de récolter les volumes d'eaux nécessaires à l'analyse des différents paramètres, et décrire convenablement les interactions eau-roche (surface réactive suffisante). Par ailleurs, le volume doit être limité de façon à éviter de manipuler des quantités d'eau et de sédiment trop importantes. Quelques exemples de dimensionnement de colonnes, à l'échelle décimétrique, sont reportés dans le tableau ci-dessous (Tableau 2) pour des essais conduits avec des particules de taille moyenne de l'ordre du millimètre.

Tableau 2 : Exemple de dimensionnement de colonnes pour l'étude expérimentale des écoulements en milieu poreux saturé. Les unités sont exprimées en cm

	Zheng et al. (2002)	Richnow et al. (2003)	Huizier et al. (1986)	Sassner et al. (1994)	Hornberger et al. (1992)	Fesch et al. (1998)	Scheytt et al. (2004)	Griffioen et Appelo (1993)
Diamètre (d)	2.5	4.5	5.11	19.4	4.8	5.3	14	6
Hauteur (h)	25	40	30.5	100	14	13.5	35	13.6
Rapport (d/h)	0.10	0.11	0.17	0.19	0.34	0.39	0.40	0.44

1.2.3 Contrôle de la température

Le contrôle et le maintien d'une température constante au cours de l'essai (condition isotherme) est indispensable dans le cadre de ces travaux. Afin de satisfaire cette exigence, différents modes de thermo-régulation ont été envisagés :

- en plaçant les colonnes dans un bain thermostaté
- en équipant les cellules d'une double enveloppe alimentée par une boucle thermique

- en disposant les colonnes dans une enceinte thermique aéro-régulée.

Dans l'ensemble des cas, l'échange de chaleur, pour apporter (ou éliminer) des calories au système, est effectué à travers la paroi de la colonne. Parmi ces diverses solutions, nous avons opté pour l'enceinte climatique aéro-régulée pour des raisons technico-économiques.

Ces différents domaines de réflexions nous ont ainsi permis d'orienter le processus de sélection et de définir un cahier des charges précis, aboutissant à la conception et la mise en œuvre du pilote BIOTHERMEX, tel que décrit ci-après.

1.3 Présentation du dispositif expérimental BIOTHERMEX

1.3.1 Principe de l'essai et démarche

L'ensemble du dispositif permet de faire circuler un fluide dans un milieu poreux (*i.e* matrice sédimentaire provenant des sites d'étude) sous des conditions thermiques, hydrauliques et chimiques déterminées et contrôlées. Le fluide, de composition initiale fixée, est injecté en entrée de la colonne à travers un volume de matrice et récupéré en sortie après avoir percolé à un débit donné dans la colonne. La matrice sédimentaire se trouve ainsi constamment saturée par le fluide. La circulation de la phase liquide à travers cette matrice est assurée de façon ascendante afin de minimiser la formation d'écoulements préférentiels.

Le tableau 3) décrit l'ensemble des paramètres de contrôle du dispositif. Les paramètres imposés sont les suivants : le débit entrant, la température du fluide et de l'échantillon, et la composition physico-chimique et microbiologique du fluide percolant. Les paramètres mesurés sont les suivants : mesure de la pression différentielle (entrée/sortie de colonne), la composition physico-chimique du fluide en sortie de colonne, et les paramètres relatifs à la dynamique des communautés bactériennes.

Les essais sont conçus pour permettre d'identifier et de quantifier clairement :

- les modifications chimiques du fluide intervenant lors de l'étape de percolation, liées à l'interaction entre le fluide et la matrice.
- les modifications au niveau de la structure et de l'activité des communautés bactériennes.
- les influences éventuelles de ces interactions sur l'écoulement au sein du dispositif, en particulier sur la perméabilité, en fonction du temps et des conditions expérimentales.

Tableau 3 : Paramètres de contrôle du dispositif

Paramètres	Imposés		Mesurés		Moyens de contrôle
Hydrauliques	Débit d'injection		-		Pompe chromatographique
	-		Pression différentielle		Capteurs de pression
			Débit sortant		Pesée par capteur de force
Thermiques	T°C fluide	Réservoir d'alimentation	-		Bain thermostaté + serpentín
		Entrée de colonne			Equilibration avec T°C enceinte
	T°C enceinte				Sonde Pt 100
Chimiques	Composition fluide percolant				Caractérisation de l'état initial
	-		Composition fluide en sortie	▪ Paramètres non conservatifs	Module de suivi en ligne
				▪ Paramètres conservatifs	Prélèvement + analyses ponctuelles
Microbiologiques	Composition initiale		-		Analyse état initial
	-		Suivi de l'évolution dans l'effluent		Echantillonnage + analyses

1.3.2 Eléments du dispositif sélectionné

De façon schématique les différents éléments constitutifs du dispositif sont reportées en figure 3 en trois modules principaux :

- **le dispositif amont** (réservoir et système de contrôle de l'injection) qui a pour fonction d'alimenter la cellule de percolation *via* un dispositif d'aspersion par une pompe doseuse.
- **la cellule de percolation**, organe essentiel du dispositif dans lequel l'essai de percolation est *stricto sensu* réalisé.
- **le dispositif aval** constitué d'un système de récupération du fluide, d'échantillonnage et de modules de mesure en continu.

1.3.2.1 La cellule de percolation

Chaque colonne est composée d'une cellule cylindrique en acier inoxydable de grade 316L (Figure 16a), d'une hauteur de 50 cm, d'un diamètre intérieur de 10 cm, soit un volume utile de 3.927 dm³. La fixation extérieure des embases est réalisée par boulonnage avec un joint torique assurant l'étanchéité du système et minimisant la présence de volumes mort. Un système de grille accompagné d'un géotextile permet de limiter l'entraînement de particules fines. Les colonnes ont été équipées de transmetteur de pression différentielle (série PD-33X, Keller) à sortie analogique (0-10V) permettant d'estimer les variations de perméabilité au sein du dispositif. Les cellules sont confinées dans une enceinte climatique (Figure 16b) permettant de contrôler et d'imposer les conditions thermiques de l'essai (contrôle et maintien de la température à une valeur donnée). La plage de température de fonctionnement s'étend de 5 à 60°C, englobant ainsi la gamme de températures pouvant être rencontrées au niveau des sites ateliers.

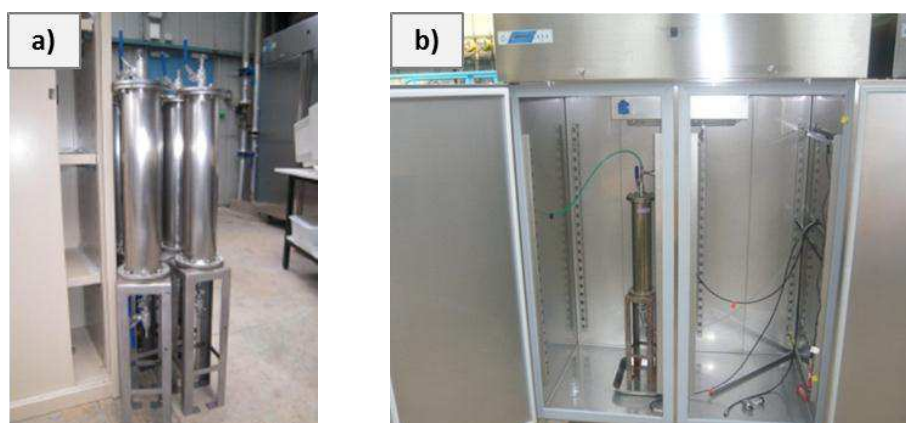


Figure 16 : a) Vue générale des colonnes et b) Enceinte climatique de confinement

1.3.2.2 Le dispositif amont

Le dispositif expérimental situé en amont de l'enceinte thermorégulée permet d'imposer les conditions d'injection du fluide dans la colonne (Figure 17). Les composantes essentielles de ce dispositif amont sont détaillées ci-dessous :

- un réservoir d'alimentation permettant de stocker et de fournir les quantités d'eau désirée. La température à l'intérieur du réservoir est maintenue constante ($T^{\circ}\text{C}$ voisine de celles rencontrées *in situ*) à l'aide un serpentin relié à un bain thermostaté.
- un système de maintien des caractéristiques de l'eau d'alimentation: les eaux souterraines issues des champs expérimentaux étant sursaturées vis à vis du CO_2 , l'exposition aux conditions atmosphériques induit une hausse très nette du pH et un déplacement des équilibres chimiques, entachant ainsi la représentativité et la pertinence de l'essai. Pour contrer cette difficulté, il a été mis en place un système de fixation du pH par le CO_2 , comportant une canne d'injection et une électrovanne asservie à une ligne de mesure de pH (pH-mètre pHM 210, Heito). Ce procédé offre un grand confort d'utilisation (système autonome), une régulation précise et permet de palier à l'utilisation traditionnelle d'acide fort.

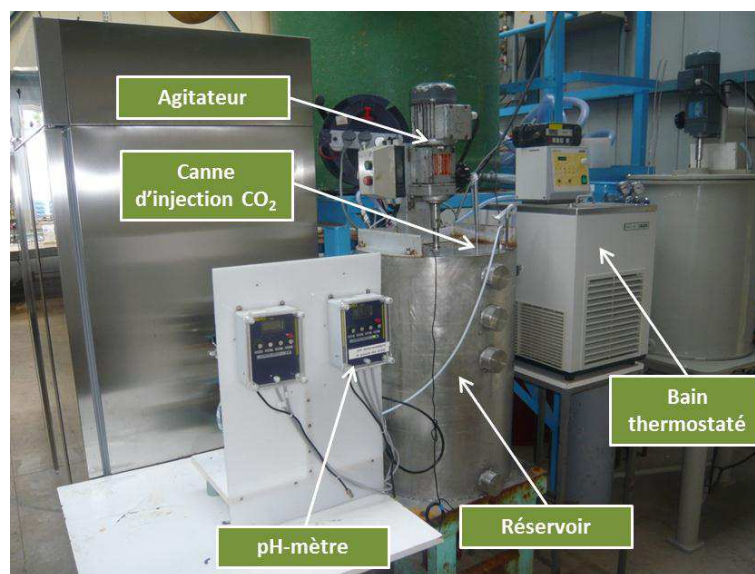


Figure 17 : Cellule de percolation confinée dans l'enceinte climatique

- une pompe doseuse à piston rotatif (Distributeur Reglo-CPF Digital, ISMATEC) permettant d'imposer le débit d'injection de l'eau d'alimentation désiré.

Par ailleurs, un jeu de vannes en aval immédiat de la pompe doseuse permet le prélèvement de l'eau d'alimentation pour en contrôler les paramètres.

1.3.2.3 Le dispositif aval

Le dispositif expérimental en sortie de l'enceinte a pour principale vocation :

- 1) de mesurer en ligne et en continu l'évolution des différents paramètres physico-chimiques (pH, oxygène dissous, Eh, conductivité) de l'eau de sortie au cours de l'essai *via* porte sonde dans lequel sont insérées les différentes électrodes. Un système d'acquisition complet, articulé autour d'une centrale d'acquisition multivoies (Keithley instruments, 2700), permet l'acquisition en temps réel et l'archivage des données physico-chimiques
- 2) de mesurer, au moyen d'un réservoir de collecte et d'une balance électronique, le débit d'eau sortant du système (évaluation des variations de perméabilité).
- 3) d'échantillonner l'eau ayant percolé à travers la colonne dans le but d'analyser l'évolution de sa composition chimique au cours de l'essai. Un système composé de multiples vannes permet en bout de la ligne de réaliser l'« aiguillage » du fluide vers différents dispositifs de prélèvement :
 - soit vers un premier réservoir (collecteur # 1, Figure 19) assurant l'échantillonnage d'eau à des fins microbiologique.
 - soit directement en direction du réservoir de collecte pour la mesure du débit en sortie de l'enceinte (collecteur # 2) après avoir été acheminé au travers du porte-sonde, spécialement conçu pour cette application.

L'échantillonnage physico-chimique est assuré en bout de ligne au moyen d'un collecteur de fractions automatique et réfrigéré (collecteur # 3, Sigma 900, Figure 20), muni de 24 flacons HDPE (polyéthylène haute densité de 1 litre), de manière à préserver la qualité du fluide après sa collecte. Cet échantillonneur fonctionne sur une programmation fonction du niveau d'eau à partir d'un signal extérieur entré sur l'embase auxiliaire. Les détecteurs, composés de tubes inox, commandent la prise d'échantillon et délivrent, au contact du fluide, un signal binaire sous la forme d'un contact sec (libre de potentiel) à la partie opérative. Ce dispositif permet ainsi de maintenir l'appareil dormant, jusqu'à atteindre le volume désiré, qui provoque le

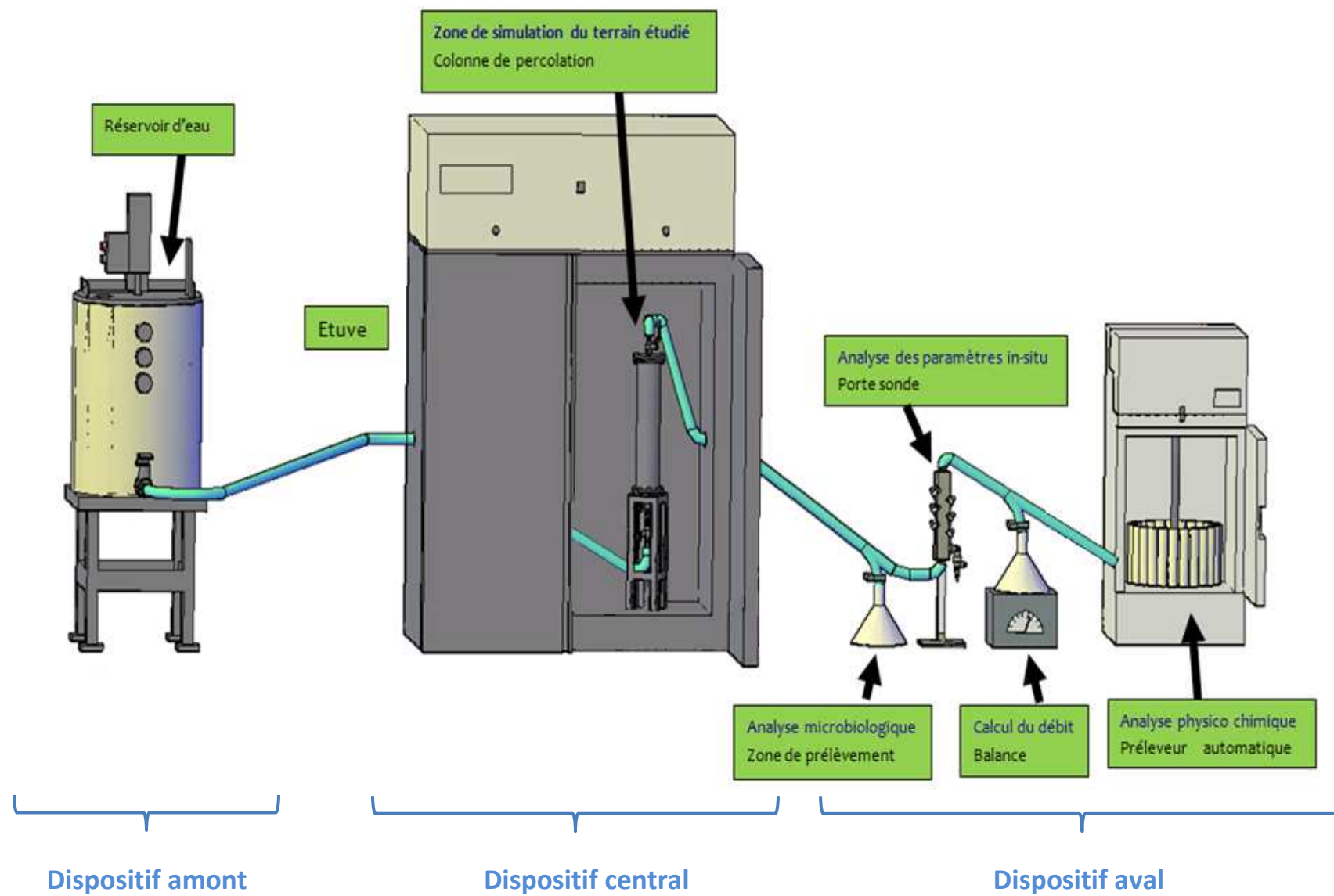


Figure 18 : Représentation générale du dispositif représenté sous AutoCAD

réveil du programme d'échantillonnage. Les échantillons de fluide ainsi prélevés servent à l'analyse des principaux paramètres chimiques (majeurs et traces).

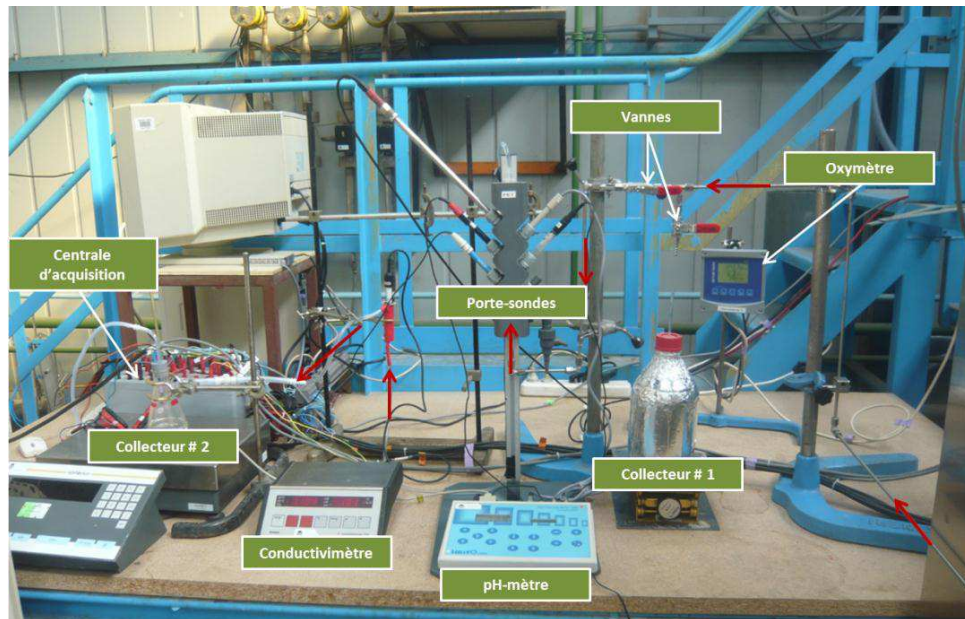


Figure 19 : Vue du dispositif aval ; le sens d'écoulement de fluide sortant de la colonne est indiqué par des flèches rouges



Figure 20 : Collecteur de fraction réfrigéré

1.4 Conduite des essais

1.4.1 Considérations générales

Le programme d'expérimentations mise en œuvre est destiné à reproduire les conditions réelles d'exploitation rencontrées au niveau des sites d'études sur un modèle réduit d'aquifère. Cette condition implique l'utilisation :

- d'une matrice sédimentaire issue ou représentative des formations géologiques hébergeant l'aquifère pour se rapprocher le plus fidèlement possible des interactions eau

souterraine-sédiment *in situ* et ainsi respecter les équilibres locaux régnant dans le milieu. Celle-ci sera par la suite homogénéisée par quartage, calibrée et stérilisée afin d'éviter la présence de microorganismes indésirables.

- d'eau souterraine issue du même site qui sera mise en contact directement (eaux brutes) avec la matrice solide, en veillant au maintien de ses caractéristiques (pH notamment).

1.4.2 Garnissage des colonnes

Afin d'assurer la reproductibilité des essais, un protocole de préparation des colonnes a été défini. Une procédure de remplissage a tout d'abord été mise au point à partir des matrices sédimentaires prélevées et se déroule comme suit : le matériau est introduit manuellement dans la cellule par couches successives, correspondant chacune à une masse de 500 g de sédiment. Entre chaque ajout, chaque strate est compactée à l'aide d'une dame mobile autour d'un axe fixé au centre d'un disque recouvrant toute la surface intérieure de la colonne. Le compactage consiste à laisser tomber, 3 fois de suite, la masse de 500 g d'une hauteur fixe de 20 cm sur la surface de la portion de sédiment (Figure 21).

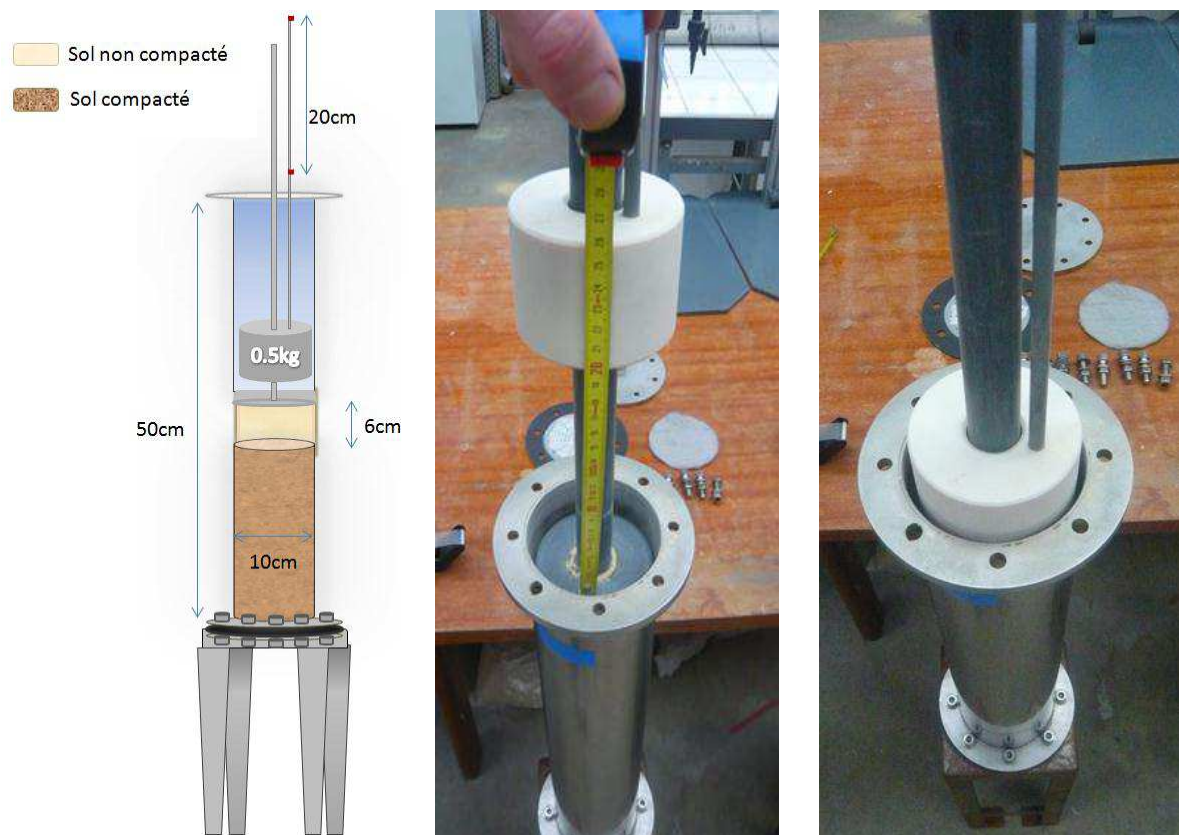


Figure 21 : Procédure de remplissage des colonnes

1.4.3 Saturation de la colonne et mise à l'équilibre

La procédure de mise en eau permet le remplissage de la porosité par la phase liquide et une mise à l'équilibre de l'écoulement. Tout comme pour la phase de percolation, la saturation des colonnes est réalisée avec de l'eau du site et de façon ascendante. La montée du front de saturation est opérée à très faible débit et de manière progressive, afin d'assurer l'évacuation de l'air occlus dans les pores et pour ne pas déstructurer la matrice, notamment par l'entraînement de particules.

Cette étape de saturation est directement suivie par une phase de mise à l'équilibre chimique entre la solution d'alimentation de composition chimique constante et le milieu poreux. Le suivi des paramètres chimiques en sortie de colonne en régime permanent (débit constant), jusqu'à l'obtention de la stabilisation, permet de déterminer le moment où cet équilibre est atteint. Il est généralement obtenu après avoir récolté un volume d'eau équivalent à environ dix fois le volume poral.

1.4.4 Caractérisation du régime hydrodynamique

Avant d'entamer les séries d'expérience, il est nécessaire de caractériser le mode d'écoulement au sein des colonnes, de manière à répondre aux objectifs suivants :

- Identifier le régime hydrodynamique de la percolation et déterminer les paramètres hydrodynamiques du milieu.
- Valider la procédure de préparation des colonnes (reproductibilité des essais ultérieurs).

Cette caractérisation est effectuée par la mise en place d'un essai de traçage, permettant d'apprécier le déplacement de l'eau à travers le milieu poreux.

1.4.4.1 Choix du traceur

Les seuls véritables traceurs, qui obéissent aux mêmes lois de mouvement que les molécules d'eau, sont des isotopes de l'eau : ($^2\text{H}_2\text{O}$), ($^3\text{H}_2\text{O}$) ou encore (H_2^{18}O) par exemple. L'emploi de ces traceurs parfaits est toutefois limité puisque leur utilisation se heurte à un coût analytique élevé. Dans la pratique, on a recours à des traceurs conservatifs, du type « molécules anioniques », qui marquent les flux d'eau sans interagir avec son environnement.

Parmi les molécules les plus utilisées, on peut citer les sels de chlorure ou de bromure. Ces marqueurs ne sont toutefois pas complètement inertes car ils peuvent être affectés, lors du transfert à travers le milieu poreux, par différents processus (interactions électrostatiques notamment).

1.4.4.2 Méthodologie de traçage adoptée

Dans le cadre de cette étude, le traceur utilisé est une solution de KCl 0,1 mol/L. La quantification de cette substance en sortie de colonne est effectuée en continue (temps de scrutation égal à 30s) à l'aide d'une cellule conductimétrique reliée à une centrale d'acquisition.

L'essai de traçage à proprement parlé comporte de trois étapes successives. Il débute par l'injection d'une solution de composition fixée jusqu'à obtenir, en sortie de colonne, une ligne de base stable, correspondant à la valeur de conductivité de la solution circulante. L'essai se poursuit par l'injection en continue du traceur jusqu'à l'obtention, en sortie de cellule, de la conductivité de la solution de traçage. Enfin, la solution de référence est à nouveau injectée dans le système jusqu'à obtention de la conductivité initiale. Le débit d'injection reste constant tout au long de ces trois étapes. Les courbes d'élution expérimentales obtenues sont ensuite normalisées selon la relation suivante :

$$\frac{C}{C_0} = \frac{CE_{mes} - CE_{ref}}{CE_0 - CE_{ref}} \quad (II.1)$$

Avec :

CE_{mes} : conductivité électrique mesurée

CE_{ref} : conductivité électrique de la solution de référence

CE_0 : conductivité électrique de la solution de traçage

Une fois les effets retards induits par la présence de volume morts corrigés, l'exploitation des courbes de restitution en fonction du temps permet d'obtenir le volume de pores ayant participé à l'écoulement ainsi que le temps de séjour à l'aide de la relation suivante :

$$Q = \frac{V_p}{t_s} \quad (II.2)$$

Avec Q = débit d'injection (dm³/min) ; V_p = volume poral (dm³) et t_s=temps de séjour (min)

La figure 7 ci-dessous résume graphiquement la méthodologie employée (Figure 22).

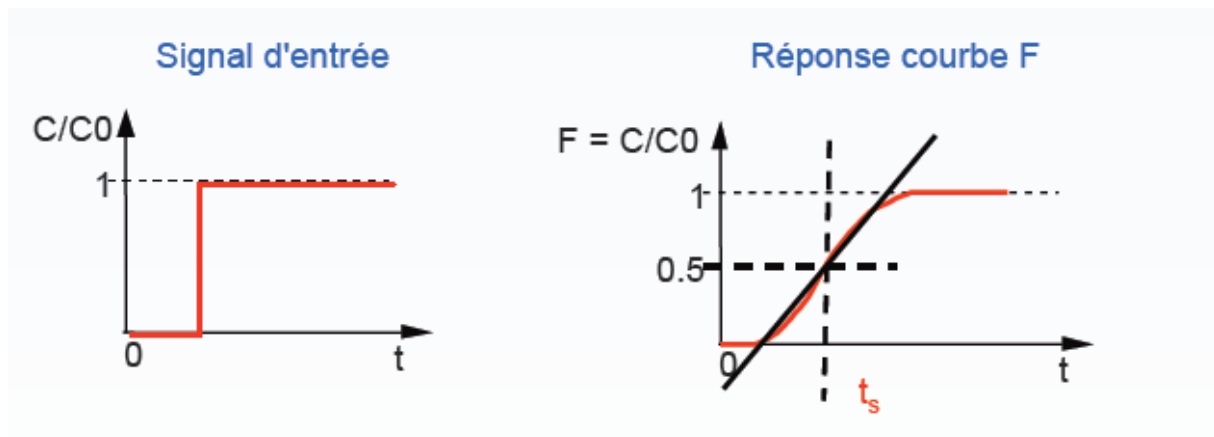


Figure 22 : Type d'injection adoptée et courbe d'élution associée

Dans le but de valider la procédure de remplissage des colonnes, la procédure est répétée sur 3 colonnes différentes préparées de façon identique.

1.4.4.3 Simulation numérique et calage du modèle

Le code de calcul géochimique PHREEQC (Parkhurst & Appello, 1999) est ensuite utilisé dans des conditions identiques (débit, longueur de colonne, porosité) pour simuler le transport du soluté non réactif dans les colonnes en 1 dimension en utilisant le modèle de convection-dispersion, le phénomène de diffusion étant considéré comme négligeable en première approche, compte tenu des débits considérés. Le calage par rapport aux courbes expérimentales a été effectué en ajustant la valeur de la dispersivité longitudinale α_L de manière à ce que les courbes de restitution expérimentales se superposent parfaitement à celles issues du modèle numérique.

2. Prélèvements et mesures in situ

2.1 Considération générales

2.1.1 Représentativité physico-chimique des échantillons d'eau

L'échantillonnage du milieu aquatique de sub-surface vise à fournir une information qualitative et quantitative sur la base de mesures et de prélèvements qui doivent refléter au mieux la composition de la ressource captée à un instant donné. Un certain nombre de

phénomènes sont susceptibles de compromettre grandement la qualité et la représentativité des prélèvements et sont regroupés en 3 grandes catégories (liste non exhaustive):

Causes propres à l'ouvrage : liées à la nature des matériaux constitutifs (réactions de surface avec les parois: corrosion, adsorption ou relargage d'éléments, etc), à un mauvais dimensionnement des crépines (positionnement inadapté par rapport à la formation), à une mauvaise complétion ou un défaut d'étanchéité de l'ouvrage entraînant une mise en communication de la formation avec les apports de surface (eaux météoritiques, ou déversements accidentels), etc.

En l'absence de telles perturbations, la présence de l'ouvrage lui-même est source de perturbation du fait de la mise en contact de la tranche d'eau présente dans l'ouvrage avec l'atmosphère. Le renouvellement de l'eau dans un ouvrage étant en effet souvent lent et/ou partiel, les gaz et les substances dissoutes qu'il contient ont tendance à s'équilibrer avec l'atmosphère, ce qui se traduit par une modification sensible des propriétés physicochimiques de la solution (température, état d'oxygénation et d'oxydo-réduction, précipitation de phases minérales, etc). Les conditions régnant dans le forage au repos peuvent affecter également de façon substantielle les processus biologiques (activité, diversité, densité de population).

La purge des ouvrages fait ainsi partie intégrante des procédures de collecte d'eau souterraine afin d'accéder à une fraction représentative de la masse d'eau.

✓ **Causes liées aux opérations de purge des ouvrages :** liées à l'utilisation d'instruments contaminés, d'une procédure inadaptée (débit excessif, temps de purge insuffisant,...), d'une mauvaise stratégie d'échantillonnage (non prise en compte des hétérogénéités de l'aquifère), ou encore d'une acquisition métrologique erronée.

✓ **Causes liées au conditionnement et au mode conservation des échantillons:** liées, par exemple, à l'utilisation de flaconnage inadapté aux éléments recherchés, à la présence de contamination ou encore à un conditionnement inadaptée (oubli d'acidification, filtration...).

2.1.2 Représentativité microbiologique des échantillons d'eau

Les questions de représentativité en microbiologie et de validité des données scientifiques qui en découlent sont largement plus délicates à apprécier, compte tenu de l'insuffisance voire la quasi absence d'études scientifiques approfondies consacrées au développement d'une telle procédure. Un certain nombre de famille de tests serait en effet nécessaire afin d'adapter les caractéristiques de purge (influences du débit, du temps de pompage, etc) aux paramètres microbiologiques (diversité, densité, activité).

Dans la pratique, les opérations de prélèvement d'eau souterraine destinées à l'analyse microbiologiques s'appuient généralement sur les procédures standard de prélèvement, en imposant toutefois une série de précautions supplémentaires, à toutes les étapes de la procédure, de façon à minimiser les sources de contaminations. Certains auteurs préconisent l'emploi de méthodes drastiques de désinfection des ouvrages (brossage et désinfection des puits par chloration) avant prélèvement, mais ces mesures s'avèrent tout simplement impensables à mettre en œuvre dans le cadre de cette étude compte tenu de l'ampleur de la procédure. De plus, elles peuvent être de nature à perturber certains équilibres physico-chimiques.

2.1.3 Synthèse

Les causes de non représentativité sont donc multiples, en particulier pour les ouvrages ne disposant pas de pompes à demeure (cas des puits d'observation) et constituent, de ce fait, une source d'incertitude importante dont il apparaît difficile de maîtriser toutes les composantes. Il convient ainsi d'adopter une procédure rigoureuse et reproductible adaptable aux différents cas d'études de façon à autoriser l'inter-comparaison des résultats au sein de la période d'investigation.

L'approche méthodologique mis en œuvre s'appuie principalement sur les prescriptions fournies par les normes ou les guides dédiés aux opérations d'échantillonnages, qui sont les suivants :

- le fascicule de documentation FD X31-615 « Qualité du sol – Méthode de détection et de caractérisation des pollutions – Prélèvements et échantillonnage des eaux souterraines dans un forage » (décembre 2000)

- les guides FD T90-523-3 « Qualité de l'Eau – Guide de échantillonnage pour le suivi de qualité des eaux dans l'environnement – Échantillonnage d'eau souterraine » (janvier 2009)
- la norme NF EN ISO 5667-3 « Qualité de l'eau – Echantillonnage - Partie 3 : Lignes directrices pour la conservation et la manipulation des échantillons d'eau » (juin 2004).

Les modalités d'exécution sont précisées dans les paragraphes suivants.

2.2 Méthodologie appliquée

2.2.1 Mesures diagaphiques préalables

Le terme diagraphie regroupe tout enregistrement continu en fonction de la profondeur dans un ouvrage (puits, forages ...) de paramètres physiques et/ou chimiques (radioactivités naturelles ou provoquées, résistivités, diamètre, contrôle de cimentation, déviation, température et conductivité de l'eau ou de tout autre fluide, vitesse d'écoulement de l'eau, pourcentage de vides, ...).

Dans le cadre de cette étude, le terme « diagraphie » fera systématiquement référence à l'acquisition simultanée et en continu de différents paramètres physico-chimiques sur la hauteur de la tranche d'eau recoupée par un ouvrage (interceptée par un ouvrage).

Ces mesures apportent un complément d'informations très important et sont, de ce fait, particulièrement adaptées aux applications en hydrogéologie. Elles présentent un triple intérêt :

- i) localiser les éventuelles zones d'hétérogénéités (zone productrice, mélange d'eau,...) ou la stratification éventuelle de la colonne d'eau en relation avec les indications lithologiques afin de guider ainsi les opérations de prélèvement (cibler la zone de prélèvement la plus pertinente) selon les objectifs fixés par l'étude.
- ii) établir une caractérisation de l'état initial de l'ouvrage (« signature ») et de la colonne d'eau qu'il contient (première approche), auquel il sera possible de se référer dans le cadre d'un suivi opéré sur site.
- iii) s'assurer de la représentativité de l'échantillon prélevé, en comparaison aux mesures obtenues lors de la phase de prélèvement.

Deux sondes multi-paramètres ont été utilisées dans le cadre de ce travail (Figure 23):

- pour une profondeur inférieure à 60 m, la sonde **YSI 6920 V2**. Celle-ci présente l'avantage d'être dotée d'une interface conviviale facilitant le paramétrage de l'instrument, mais son diamètre important et la tolérance limitée des capteurs à la pression limitent son champ d'application.
- pour une profondeur supérieure à 60 m et/ou pour des ouvrages de faible diamètre (< 50 mm), la sonde **Idronaut CTD OS 303**, conçue pour les milieux profonds (tolérance jusqu'à 700 bars).



Figure 23 : Aperçu des sondes multi-paramètres employées

Ces deux sondes sont équipées d'un assortiment d'électrodes permettant l'enregistrement des paramètres suivants : conductivité, température, pH, l'oxygène dissous, le potentiel d'oxydoréduction et la profondeur, cette dernière étant déduite des mesures transmises par les capteurs de pression différentielle.

L'acquisition est effectuée lors de la descente de l'instrument dans le forage afin de préserver l'état initial de la colonne d'eau (éviter le mélange provoqué par le passage de la sonde) dans le souci de s'assurer de la représentativité des mesures. Cette phase est précédée d'une étape de stabilisation d'environ 15 min de l'instrument dans la partie supérieure de la nappe, nécessaire à la mise à l'équilibre des sondes avec les eaux de la formation (pH et redox notamment). La vitesse de progression de la sonde est constante et comprise entre 1 et 2 m par minute de façon à minimiser les phénomènes d'« effet piston » provoqués par le passage de

la sonde mais également dans le but de garantir la fiabilité des mesures (liée au temps de réponse des électrodes). Les enregistrements sont ensuite restitués en fonction de la profondeur en ayant recours au logiciel *KyPlot®* dans sa version 2.0. La réalisation de log diagraphique a été systématiquement effectuée avant chaque phase d'échantillonnage sur l'ensemble des sites d'étude.

2.2.2 Ouvrages non équipés de dispositifs de pompage

Les prélèvements dans les ouvrages ne disposant pas de pompe à demeure sont propices à générer une plus grande variabilité au niveau de la composition de l'eau extraite, du fait de la descente d'instruments dans le puits potentiellement souillés ainsi qu'en raison des différentes modalités d'exécution qui s'offrent à l'opérateur pour pratiquer son prélèvement.

2.2.2.1 *Purge*

L'objectif de la purge vise à renouveler l'eau initialement contenue dans l'ouvrage par de l'eau provenant de la formation aquifère environnante. Une purge standard, généralement effectuée au moyen de pompes immergées, consiste à vidanger le volume d'eau contenu dans l'ouvrage, jusqu'à stabilisation des paramètres physico-chimiques mesurés tout au long de la purge (pH, Eh, Oxygène, potentiel redox).

Le matériel de pompage utilisé dans le cadre de cette étude est constitué de pompes submersibles de type MP1 (GrundfosTM) de 45 mm de diamètre associées à un générateur (BTI/MP1, GrundfosTM) à fréquence variable (0-400Hz) alimentant la pompe et permettant de régler le débit de pompage. L'acquisition des paramètres physico-chimiques a été effectuée à l'aide d'analyseurs multiparamètres (WTW, 340i, Multi 3420 et Multi 3430), permettant la mesure simultanée du pH, de la température, de l'oxygène dissous, du potentiel redox ainsi que de la conductivité.

Les différents paramètres qui ont été ajustés lors de l'étape de purge sont les suivants :

✓ Position de la pompe de purge :

Le positionnement a été choisi en fonction des caractéristiques des ouvrages et de l'aquifère considéré. D'une manière générale et compte tenu de la relative homogénéité des formations aquifères cibles, la crépine d'aspiration de la pompe a été positionnée au niveau de la partie médiane de la zone crépinée de l'ouvrage. Dans le cas où la crépine n'est pas totalement

immergée, la pompe a été placée à mi-hauteur de la colonne d'eau. Afin de garantir des données harmonisées, la pompe a systématiquement été placée à la même position pour les différentes campagnes successives au sein de chacun des ouvrages.

Au préalable, un soin tout particulier a été apporté à la préparation et la désinfection des instruments introduits dans l'ouvrage (sonde piézométrique, sonde multiparamètre, pompe et flexible associé) :

- la pompe est, avant chaque campagne de prélèvement, immergée durant une quinzaine de minutes dans une solution aqueuse d'éthanol (70%) puis rincée à l'eau distillée.
- le flexible de refoulement (PVC tressé) est renouvelé à chaque campagne de prélèvement de façon à minimiser les sources de contamination.

Lors de la descente de la pompe dans l'ouvrage, toute partie susceptible d'entrer en contact avec l'eau de la formation (pompe, câble d'alimentation et flexible) est nettoyée au moyen d'une lingette imbibée d'alcool en utilisant des gants à usage uniques. De plus, entre chaque point de prélèvement au sein d'une même campagne (durée comprise entre 1 et 2 jours), le matériel pompe et flexible) est placé dans une bassine dans laquelle baigne une solution aqueuse d'alcool afin de faciliter le nettoyage et pour réduire le contact avec des surfaces extérieures.

✓ Débit de purge :

L'examen de la littérature montre que le débit de pompage est susceptible d'exercer une incidence significative sur la composition chimique de l'eau, en particulier sur leur contenu en polluant : une ségrégation par taille a notamment été observée pour les HAP en réponse à l'utilisation de différents débits (mobilisation de grosses molécules fixées sur la phase solide à de fort débit). De tels résultats suggèrent que ces constatations peuvent probablement s'étendre aux paramètres microbiologiques.

En règle générale, il est recommandé d'utiliser un débit de purge faible à modéré de façon à tendre vers un écoulement laminaire de l'aquifère vers le puits et ainsi minimiser les turbulences au niveau de la section crépinée. La mesure du rabattement du niveau d'eau dans le puits est utilisée pour vérifier l'intensité de cet impact. Dans ce contexte, le débit de purge a été ajusté selon la productivité de chaque ouvrage afin d'obtenir des conditions hydrodynamiques stables, appréciées par la mesure du rabattement dans l'ouvrage (niveau

dynamique), tout en permettant un renouvellement assez rapide de l'eau. Les débits de purge sont ainsi compris entre 0,7 et 1,3 m³/h pour les 11 ouvrages visités lors de cette étude.

Ces paramètres de purge ont été consignés dans les bordereaux de prélèvement et ont été réutilisés pour chacun des ouvrages au fil des différentes campagnes de prélèvement.

✓ Critères d'arrêt de purge

Deux critères sont généralement utilisés de concert pour déterminer le moment opportun pour basculer vers l'étape d'échantillonnage à proprement parlé:

➤ le volume purgé, rapporté au « volume de puits » ou volume de renouvellement, défini comme le volume d'eau contenu dans le tubage, selon la relation suivante :

$$V_{\text{puits}} = h \cdot \pi \frac{d^2}{4} \quad (\text{II.3})$$

Avec : d= diamètre interne du tubage et h= hauteur de la colonne d'eau dans l'ouvrage (évaluée à partir des mesures du niveau statique ainsi que la côte du fond de l'ouvrage).

Ce volume de puits est parfois augmenté du volume contenu dans le massif filtrant lorsque celui-ci existe. Les valeurs classiquement appliquées pour le taux de renouvellement de l'eau sont comprises entre 3 et 10 fois d'après la norme AFNOR FD X 31-615, 2000 et de 4 fois minimum d'après l'US-EPA, 2007. Les valeurs retenues dans le cadre de cette étude sont comprises entre 5 et 12 fois le volume de puits.

➤ la stabilisation des paramètres physico-chimiques acquis durant la phase de purge qui a pour but de s'assurer du renouvellement de la colonne d'eau. L'acquisition est effectuée par immersion des sondes dans le fluide non turbulent en alimentation continue, qui permet de s'affranchir, compte tenu des débits mis en jeu, du contact avec l'atmosphère.

La stabilisation des paramètres est considérée comme atteinte lorsque les écarts entre chaque lecture se révèlent inférieurs aux valeurs listées ci-dessous, pour un minimum de 3 lectures consécutives espacées de 5 minutes :

- **Température** : écart inférieur à 0, 2°C de la lecture précédente
- **pH** : écart inférieur à 0,05 unité pH
- **Eh** : écart inférieur à 5%
- **Oxygène dissous** : écart inférieur à 5%
- **Conductivité** : écart inférieur à 2%

Un exemple d'enregistrement de ces différents paramètres est reporté sur la figure 24. Dans cet exemple, la stabilité, telle qu'énoncée précédemment, survient rapidement, dès le second volume de puits. Ce phénomène s'observe dans l'ensemble des ouvrages sur l'ensemble de la période d'étude et est imputable à un temps de renouvellement naturel très rapide des eaux dans l'ouvrage.

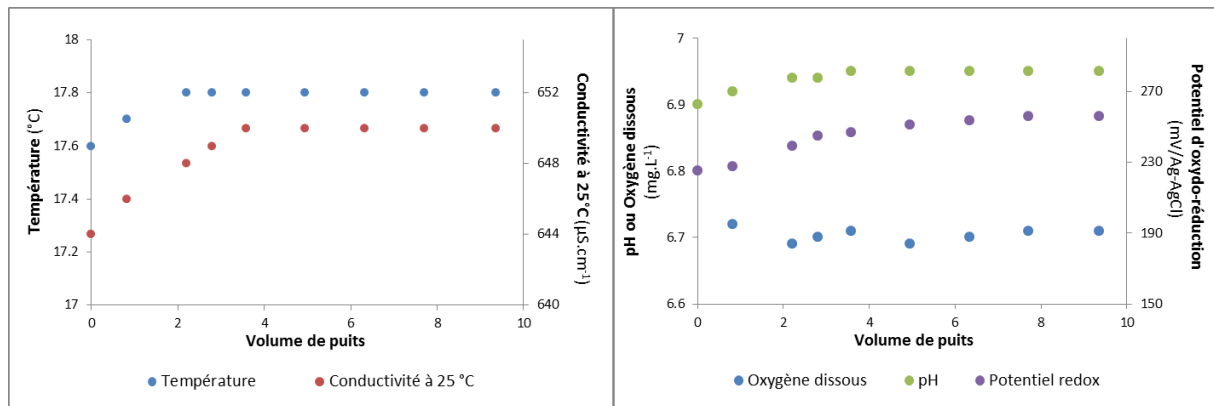


Figure 24 : Exemple de suivi des 5 paramètres pH, température, conductivité, potentiel redox et oxygène dissous en fonction du volume de puits en cours de purge.

Dans le cadre de cette étude, le forage sera ainsi considéré comme renouvelé et l'eau représentative de la formation aquifère si, et seulement si, les deux conditions suivantes sont remplies :

- 1) Stabilisation des paramètres physico-chimiques, constituant la condition *sine qua non* aux opérations d'échantillonnage.
- 2) Purge d'un volume de puits compris entre 5 et 12 fois le volume de puits selon la configuration des ouvrages, largement au-delà du volume de puits nécessaire pour assurer la stabilisation des principaux paramètres physico-chimiques. L'établissement de diagraphies à l'issue de l'application de ce protocole (diagraphie post pompage) pour l'ensemble des ouvrages testés (données non montrées), indique que le renouvellement de la colonne d'eau est parfaitement réalisé (distribution homogène des paramètres le long du profil vertical) et permet ainsi de valider la procédure.

Par ailleurs, le mode opératoire propre à chaque ouvrage (positionnement pompe, débit de purge, volume purgé) a été soigneusement consigné dans les bordereaux de prélèvement de terrain et réutilisé au fil du temps afin d'assurer la reproductibilité de la procédure. Dans cette

optique, les mêmes instruments de mesures (électrodes et solutions étalons associées) seront utilisés afin d'éviter toute autre source d'erreur potentielle.

2.2.2.2 Echantillonnage

Le prélèvement est réalisé en sortie de pompe à un débit réduit d'environ de moitié par rapport à celui de purge pour les raisons listées ci-dessous :

- limiter le dégazage de la solution en particulier lorsque celle-ci contient des substances volatiles et semi-volatiles (COHV par exemple)
- favoriser la représentativité des prélèvements microbiologiques : le débit plus élevé utilisé pour la purge permet d'éliminer les éventuels biofilms présents au voisinage de la crépine d'aspiration. L'abaissement des conditions hydrodynamiques avant le prélèvement permet en principe d'éviter le décrochement supplémentaire d'agrégats.

Le conditionnement englobe les étapes de filtration et de fixation des échantillons nécessaires pour préserver leurs caractéristiques jusqu'au moment de l'analyse. Cette étape est réalisée sur le terrain, immédiatement après la phase de prélèvement, de façon à éviter toute évolution de la composition des eaux. Le tableau 4 ci-dessous répertorie les procédures adoptées.

Les flacons sont rincés préalablement avec l'eau du site (filtrée ou non suivant la nature du conditionnement). Les prélèvements bactériologiques sont quant à eux réalisés avec les précautions d'usage de microbiologie, dans des flacons HDPE (polyéthylène haute densité) stériles. L'ensemble des échantillons sont ensuite placés à 4 °C et à l'obscurité jusqu'au retour au laboratoire.

Tableau 4 : Procédures de conditionnement des échantillons et flaconnage associé (PE = Polyéthylène ; V = Verre ; COT et COD = Carbone organique total et dissous respectivement ; MES = Matière en suspension ; HAP = Hydrocarbures aromatiques polycycliques)

Déterminations	Filtration	Fixation	Flaconnage
Alcalinité	✓	-	PE 100 ml
Anions	✓	-	PE 100 ou 250 ml
Cations	✓	✓ (HNO ₃ pH < 2)	PE 50 ml
COT	-	✓ (H ₂ SO ₄ pH < 2)	V 125 ml
COD	✓	✓ (H ₂ SO ₄ pH < 2)	V 125 ml
MES	-	-	PE 1 L
COHV - BTEX	-	-	V 40 ml Flacon EPA
HAP	-	-	V ambré 1 L

2.2.3 Ouvrages avec pompe à demeure

La procédure de collecte d'eau dans les ouvrages équipés de moyens de pompage dédiés (cas des puits de production) est nettement plus aisée que dans le cas précédent, notamment en raison de sa facilité de mise en œuvre (peu de matériel requis) et de l'évincement de la lourde procédure de décontamination des équipements introduits dans le forage.

Pour les ouvrages concernés, l'échantillonnage sera effectué au niveau d'un piquage installé sur la colonne d'exhaure (Figure 25) après un fonctionnement d'environ 30 à 60 minutes de la pompe au débit nominal, si celle-ci est au repos. Le système de robinetterie est au préalable désassemblé, rincé à l'alcool puis à l'eau déminéralisé avant rinçage avec l'eau prélevée. Les échantillonnages sont réalisés dans les conditions analogues de stabilisation des paramètres physico-chimiques que ceux décrits pour les ouvrages sans pompe à demeure.



Figure 25 : Exemple de piquage greffé sur la colonne d'exhaure

2.2.4 Dosage de l'alcalinité *in situ*

La mesure de l'alcalinité de l'eau est réalisée sur le terrain dans les plus brefs délais à l'issue du prélèvement, compte tenu des potentialités d'évolution des propriétés de la solution. Les eaux souterraines présentent par exemple, dans la plupart des cas, une fugacité en CO_2 de 1 à 2 ordres de grandeur supérieure à celle d'une eau en équilibre avec les conditions de surface. Bien que l'alcalinité soit considérée comme conservative vis à vis des échanges de CO_2 , le

dégazage de la solution et la hausse de la valeur du pH qui lui est associée, sont susceptibles d'entraîner des précipitations d'espèces minérales carbonatées entachant, dans ce cas de figure, la mesure et par conséquent, la pertinence interprétations qui en découlent. Pour le principe de la méthode et les modalités du dosage, se reporter à la section 3.1.1.1.5.

3. Techniques analytiques

3.1 Analyse inorganique et organique des solutions aqueuses

3.1.1 Mesure et analyse des paramètres non conservatifs

Le caractère non conservatif de ces paramètres est lié au fait que ces grandeurs sont sujettes à évoluer, dès lors qu'elles sont mesurées en dehors de leur environnement. Dans le cas d'un prélèvement d'eau souterraine par exemple, l'information est altérée dès la mise en contact avec le milieu extérieur, durant le transport, ou encore lors des phases de conditionnement.

3.1.1.1 pH

La mesure du pH renseigne sur le caractère acide ou basique d'une solution aqueuse. Etant donné qu'il conditionne la plupart des mécanismes chimiques et biologiques dans les eaux, sa mesure revêt d'une importance capitale à la caractérisation de tout système. La mesure du pH est fondée sur la transformation du signal électrique obtenu par mesure différentielle entre une électrode indicatrice (électrode de verre) et une référence. Ce signal est proportionnel à l'activité des ions H^+ a_H par la relation mathématique suivante (loi de Nernst) :

$$E = E_0 + 2.303 \frac{RT}{nF} \log a_H \quad (II.4)$$

Où : E : potentiel mesuré
 E0 : potentiel standard de l'électrode de référence et des solutions internes
 R : constante des gaz parfaits (8.314 J.K-1.mol-1)
 T : température en Kelvin
 n : charge de l'ion
 F : constante de Faraday (96 496 C)

Les mesures de pH ont été effectuées à l'aide d'électrodes combinées associées à divers pH-mètres (WTW 197i, WTW 3430i, WTW Multi 3430, HACH HQ40d, HEITOLAB MPC 350) dotés d'une compensation automatique de la pente de l'électrode suivant la température.

L'étalonnage des électrodes a été réalisé à l'aide de solutions tampons de faible force ionique $< 0,1M$, adaptées à celle des milieux examinés.

3.1.1.2 Potentiel d'oxydo-réduction

Le potentiel d'oxydo-réduction est une grandeur empirique qui rend compte du pouvoir oxydant ou réducteur d'un milieu, c'est-à-dire de sa tendance relative à gagner ou céder des électrons. Il est mesuré par la différence de potentiel entre une électrode inattaquable de platine et une électrode de référence à potentiel constant (Ag-AgCl, KCl 3 M dans le cadre de cette étude). Par convention, on ramène la valeur de potentiel obtenue par rapport à la demi pile à hydrogène, dont le potentiel d'électrode est fixé à 0V à l'état standard ($p_{H_2}=1 \text{ atm}$; molalité $H^+=1$). A cette fin, on applique la relation suivante pour une température donnée :

$$E_H = E_{\text{mesuré}} + E_{\text{référence}} + \Delta E \quad (\text{II.5})$$

Avec :

E_H = potentiel exprimé en V/ENH (électrode normal à hydrogène)

$E_{\text{mesuré}}$ = potentiel mesuré (en V)

$E_{\text{référence}}$ = potentiel de la demi-pile de référence en V/ ENH (en V), corrigé selon la température et la concentration en électrolyte.

ΔE = dérive de l'électrode, appréciée au moyen d'une solution de référence (ex : 220 mV/Ag-AgCl à 25°C)

Par analogie avec la caractérisation de l'acidité d'un milieu, les mesures sont par la suite exprimées sous la forme de potentiel d'électron (pe), défini par $pe = -\log(e^-)$, où (e^-) est l'activité de l'électron. Cette grandeur est reliée au potentiel redox par la formule de Nernst :

$$pe = \frac{F}{RT \ln 10} \cdot E_H \quad (\text{II.6})$$

Avec R : constante des gaz parfaits ($8,314 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$), T : température en Kelvin et F : constante de Faraday (96485 C.mol^{-1}).

Une faible valeur de pe renvoie ainsi à une forte activité des électrons, c'est à dire une grande tendance de la solution à céder des protons.

3.1.1.3 Conductivité

La conductivité électrique traduit la capacité d'une solution aqueuse à conduire le courant électrique, du fait de la présence de sels minéraux dissous qui jouent le rôle de conducteur de seconde espèce. La mesure fournit une indication sur la minéralisation globale de la solution (force ionique), même s'il ne s'agit que d'un paramètre non spécifique.

Le choix des constantes de cellule a été adapté à la plage de conductivité des eaux souterraines concernées, *i.e* inférieure à $1000 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$. Les différentes mesures ont été réalisées à la température de la prise d'essai puis transposées à une température de référence (25°C), de façon à faciliter la comparaison des résultats. La conversion en température a été effectuée en ayant recours au système de correction non linéaire décrit par la norme *NF EN 27888 ISO 7888* (janvier 94). Compte tenu du fait que ce facteur de correction ne s'applique pas aux solutions étalons de KCl, l'étalonnage ponctuel des sondes a été réalisé à la température de référence de 25°C , dans une enceinte thermostatée.

3.1.1.4 Oxygène dissous

La teneur en oxygène dissous d'un milieu aquatique est en liaison étroite avec de nombreux paramètres, à la fois physiques (température, mélange d'eau, etc), chimiques (salinité, réactions d'oxydation, etc) et biologiques (respiration aérobie notamment). Cette position centrale dans les processus réactionnels lui confère un intérêt majeur dans l'évaluation de l'état global du milieu aquatique. Il est, à ce titre, couramment utilisé en tant qu'indicateur de la qualité des eaux (estimation du degré de pollution des eaux, diagnostic biologique du milieu). Les mesures d'oxygène dissous ont été effectuées au moyen de capteurs mettant en œuvre deux types de technologies distinctes :

- méthode de mesure ampérométrique ou électrode de Clark : la cellule de mesure est constituée de deux électrodes (anode et cathode) confinées dans une solution d'électrolyte (KOH) et séparé de l'échantillon par une membrane perméable à l' O_2 . La réduction de l'oxygène à la cathode génère un courant proportionnel à la quantité d'oxygène diffusant au travers de la membrane, elle-même proportionnelle à la pression partielle en oxygène de l'échantillon. Les cellules utilisées sont de type InPro[®] 6800 ou Cellox 325 associées respectivement à un transmetteur M300 (Mettler Toledo) et à un oxymètre de terrain Oxi 340i (WTW).

- méthode optique, communément référée comme la méthode par luminescence : le capteur possède une couche de luminophore excitée par de courtes impulsions lumineuses (vertes ou bleues), et qui répondent par l'émission d'une lumière fluorescente rouge. Les molécules d'oxygène se combinent avec ces molécules marqueuses et réduisent la lumière fluorescente émise (extinction de luminescence). Cette réduction de fluorescence, tant au niveau de l'intensité que de la durée d'émission, est ainsi inversement proportionnelle à la

quantité d'oxygène présent dans l'eau. Les capteurs employés sont de type FDO[®] 925 (WTW) et LDO101 (Hach Lange).

3.1.1.5 Dosage de l'alcalinité par potentiométrie

3.1.1.5.1 Considération générales

✓ Définition

L'alcalinité d'une eau caractérise la capacité d'un système aqueux à résorber des acides forts, du fait de la présence d'espèces basiques susceptibles de réagir avec les protons. Elle caractérise par conséquent son pouvoir tampon, c'est à dire son degré d'inertie lors d'une adjonction d'acide. Elle est habituellement quantifiée par une titration à l'acide, jusqu'à atteindre un pH voisin de 4,5 et s'exprime en milléquivalent ou millimole de charge protonique.

L'alcalinité est un concept complexe, compte tenu de la présence potentielle de couples acido-basiques actifs dans le domaine couvert par la titration, qui entraîne une certaine confusion quant à la contribution des différentes espèces chimiques en présence.

Une définition rigoureuse, introduite par Dickson (1981), permet de palier à ce problème via l'introduction d'une constante d'équilibre de référence (pK_{ref}), spécifiant le « niveau zéro de protons », et applicable aux différents couples acido-basiques du système étudié. L'espèce chimique d'un système acido-basique donné qui prédomine à $pH=pK_{ref}$ sera considérée comme le niveau zéro en proton, les acides faibles avec un $pK_A \leq pK_{ref}$ ou $pK_A \geq pK_{ref}$ seront considérés tantôt comme donneurs (contribution négative à l'alcalinité) et tantôt en tant qu'accepteurs de protons (contribution positive à l'alcalinité) respectivement.

Cette valeur de pK_{ref} a été fixée arbitrairement par Dickson à 4,5 en condition standard ($T=25^\circ C$, $I=0$, $P=1bar$) et correspond approximativement au point d'équivalence de l'acide carbonique (point de fin de titration).

L'exemple est donné avec les couples de l'acide phosphorique (Figure 26). A $pH=pK_{ref}$, l'espèce prédominante est l'ion $H_2PO_4^-$, *i.e* le niveau zéro en proton tel que défini précédemment. HPO_4^{2-} , avec un pK_2 de 7,2 et PO_4^{3-} , avec un pK_3 de 12,7, seront des accepteurs de protons tandis que l'espèce H_3PO_4 sera considérée comme donneuse de proton.

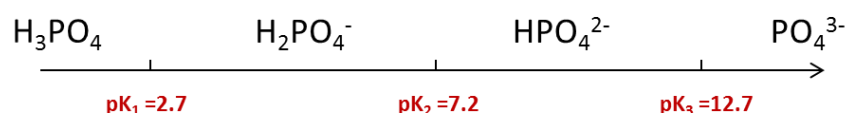


Figure 26 : Couples acido-basiques de l'acide phosphorique H_3PO_4

L'alcalinité totale est ainsi définie comme étant égale à la quantité de protons nécessaire pour neutraliser l'excès d'accepteurs de protons, *i.e* composés de bases formées à partir d'acides faibles de $pK_A \geq 4,5$, par rapport aux donneurs de protons, *i.e* les acides caractérisés par un $pK_A \leq 4,5$, par unité de masse.

Le tableau 5 représente les principaux couples acido-basiques potentiellement intégrables lors du calcul de l'alcalinité.

Tableau 5 : Contribution de diverses espèces aqueuses à l'alcalinité

Acide	Base	pK_A	Contribution à l'alcalinité (H^+ eq/mol)
HS^-	S^{2-}	18.51	2
H_2O	OH^-	14	1
$H_3SiO_4^-$	$H_2SiO_4^{2-}$	13.1	2
HPO_4^-	PO_4^{2-}	12.35	2
HCO_3^-	CO_3^{2-}	10.33	2
H_4SiO_4	$H_3SiO_4^-$	9.82	1
H_3BO_4	$H_2BO_3^-$	9.24	1
NH_4^+	NH_3	9.24	1
$H_2PO_4^-$	HPO_4^{2-}	7.2	1
H_2S	HS^-	7.03	1
H_2CO_3	HCO_3^-	6.35	1
CH_3COOH	CH_3COO^-	4.76	1
HF	F^-	3.2	-1
H_3PO_4	$H_2PO_4^-$	2.15	-1
HSO_4^-	SO_4^{2-}	1.98	-1

Par ailleurs, la présence de substances organiques dans les eaux naturelles est susceptible de contribuer à une part significative (quelques pourcent) de l'alcalinité (Kim & Lee, 2009) puisque celles-ci se comportent généralement comme des acides faibles. L'expression étendue de l'alcalinité (Alk) s'écrit donc :

$$Alk = [HCO_3^-]_t + 2[CO_3^{2-}]_t + [OH^-]_t - [H^+]_t + \sum [Bases\ mineures]_t \quad (II.7)$$

Avec :

$$[OH^-]_t = [OH^-] + [MgOH^+] + [CaOH^+] + \dots \quad (II.8)$$

$$[H^+]_t = [H^+] + [HSO_4^-] + [HF] + [H_3PO_4] + \dots \quad (II.9)$$

$$\begin{aligned} \sum (Bases\ mineures) = & [F^-] + [H_2BO_3^-] + [H_3SiO_4^-] + 2[H_2SiO_4^{2-}] \\ & + [HPO_4^{2-}] + 2[PO_4^{3-}] + [HS^-] + 2[S^{2-}] + [NH_3] \\ & + [Acide\ Organique^-] \end{aligned} \quad (II.10)$$

Dans la littérature, on trouve également des définitions alternatives, établies à partir de la condition d'électroneutralité (Michard, 2002), qui définissent l'alcalinité comme étant la somme des charges des cations inactifs (acides conjugués des bases fortes) tels que Na^+ , Ca^{2+} ..., diminuée de la charge des anions inactifs (bases conjuguées des acides forts) tels que Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , Plus généralement, si I^{z+} désigne un ion inactif vis-à-vis des protons de valence z^+ , et $A^{z'+}$, un ion actif de charge z'^+ , on obtient :

$$Alk = \sum_i z_i [I^{z+}] = - \sum_i z'_i [A^{z'+}] \quad (II.11)$$

Soit :

$$\begin{aligned} Alk = & [Na^+] + [K^+] + 2[Mg^{2+}] + 2[Ca^{2+}] - [Cl^-] - 2[SO_4^{2-}] - [NO_3^-] \\ = & [HCO_3^-] + 2[CO_3^{2-}] + [OH^-] - [H^+] + \sum [Bases\ mineures]_t \end{aligned} \quad (II.12)$$

Cette écriture est particulièrement utile pour dégager certaines propriétés conservatives de l'alcalinité (se reporter au paragraphe 3).

✓ Approximations et justifications

L'alcalinité dans les eaux naturelles est principalement portée par le système carbonate, qui représente le principal couple acido-basique actif en présence. Dans l'eau de mer, il constitue environ 95 % de l'alcalinité de l'eau tandis que les 5 % restant proviennent essentiellement du système borate ($H_4BO_4^-$). Dans les eaux continentales, il est largement prépondérant. Une fraction accessoire peut provenir des systèmes phosphates, silicates et borates dont les proportions varient selon le contexte local (nature géologique des terrains traversés, pollution industrielles ou agricoles, ...etc). Dans la plupart des cas cependant, les bases mineures se

retrouvent à des valeurs de concentration inférieures à celle des ions H^+ ou OH^- , ce qui conduit à simplifier l'équation (II.1) qui devient :

$$Alk = [HCO_3^-] + 2[CO_3^{2-}] + [OH^-] - [H^+] \quad (II.13)$$

De même, en pratique, une simplification couramment admise consiste à négliger la contribution respective des termes $[H^+]$ et $[OH^-]$ qui sont en général largement minoritaires par rapport à la concentration en carbone inorganique dissous dans la gamme de pH considéré.

✓ Propriétés théoriques

L'alcalinité possède certaines propriétés qui s'avèrent grandement utile dans la compréhension et la mise en évidence de différents processus biogéochimiques impliqués dans l'évolution de la qualité des eaux (Wolf-Gladrow *et al.*, 2007).

L'alcalinité est tout d'abord indépendante de la température et de la pression si elle est exprimée en unités massiques. Cette propriété conservative est également valable vis à vis des processus de mélange d'eau (la concentration varie proportionnellement aux variations de volume) ou vis à vis de la dissolution ou du dégazage de CO_2 , telle que montré explicitement ci-dessous :



D'après l'expression (2.6), on remarque que la concentration des espèces inactives reste inchangée et donc que la réaction n'affecte pas la valeur de l'alcalinité.

En revanche, un certain nombre de mécanismes sont susceptibles d'affecter la valeur de ce paramètre, telles que la précipitation ou la dissolution de sels minéraux comme par exemple la calcite :



La dissolution d'une mole de calcite libère une quantité équivalente d'ion inactif Ca^{2+} contribuant ainsi à élever la valeur de l'alcalinité de 2 moles. En revanche, la dissolution d'un minéral comme le gypse (sulfate de calcium hydraté), produisant les ions Ca^{2+} et SO_4^{2-} , tous deux inactifs et de charges opposées, ne la modifie pas.

Les processus biologiques exercent également un contrôle sur les valeurs d'alcalinité. On citera par exemple les réactions de nitrification, dénitrification, sulfato-réduction,...

3.1.1.5.2 Approche méthodologique

✓ Méthode en laboratoire

Les mesures d'alcalinité en laboratoire ont été réalisées par titration potentiométrique en recourant aux dispositifs de titration suivants :

- Titrimètre TIM 900 (Radiometer analytical) équipé d'une burette automatique ABU 901 de 20ml. Le logiciel de saisie des données Tim Talk version 9 a été utilisé pour exploiter les données.

- Titrateur Titrando 905 (Metrohm), associé à son unité de dosage 800 Dosino (capacité : 5 ml) et au logiciel TiamoTM, dans sa version 2.3.

La solution à analyser, préalablement filtrée, est titrée par une solution d'HCl 0.1 N certifiée (Titrisol®, Merck). La variation du potentiel au cours du dosage est indiquée par une électrode combinée de pH. Pour chacun de ces appareillage, la mise au point d'une méthode a été nécessaire mais ne fera pas l'objet d'un développement détaillé dans ce mémoire. Le mode de dosage adopté repose simplement sur un ajout incrémentiel du réactif titrant en condition dynamique, permettant d'asservir continuellement l'injection du titrant à la différence de potentiel enregistrée. Ceci permet notamment d'optimiser la durée de dosage tout en garantissant une excellente précision dans la détermination du point équivalent (forte densité de point au voisinage de point d'équivalence).

✓ Méthode de terrain (*in situ*)

Le dosage est effectué manuellement par titration potentiométrique à l'acide chlorhydrique 0.1N à l'aide d'un titrimètre digital HACH®, permettant de délivrer de très fins volumes d'incrément (1,25 µl). Un volume V d'eau souterraine (compris entre 25 et 50 ml, selon la géométrie de la cellule électrochimique) est amené rapidement à un pH voisin de 4,5 puis les mesures sont resserrées au voisinage du saut de potentiel (~ 4,3) jusqu'à un pH d'environ 3,8. La détermination du point équivalent et de la valeur de l'alcalinité correspondante, est déduite de la méthode de Gran.

✓ Détermination du point équivalent

La détermination du point d'équivalence a été effectuée au moyen de deux méthodes qui sont décrites ci-dessous.

Méthode par dérivation : le point de fin de titrage est tout d'abord localisé en traitant les courbes de neutralisation acquises par le titrateur sous Excel en traçant les courbes de la dérivée première ($\Delta E/\Delta V$ en fonction de V) et de la dérivée seconde (dérivée seconde ($\Delta^2 E/\Delta V^2$ en fonction de V). Le point d'équivalence est déduit de la courbe de la dérivée seconde, qui s'annule au point où la dérivée première atteint son maximum.

Méthode de Gran : il s'agit d'une méthode de linéarisation de la fonction reliant le pH au volume d'acide ajouté, permettant de déterminer le volume équivalent. La fonction de Gran (1952) est définie par la relation suivante :

$$F(V) = (V_0 + V) \cdot 10^{-pH} \quad (II.16)$$

Avant le point d'équivalence, la quantité de protons en solution, et donc la fonction de Gran, n'augmentent pratiquement pas, du fait de la neutralisation des incréments d'acides par les bases en présence. En revanche, dès que les espèces alcalines se retrouvent entièrement neutralisées (alcalinité nulle), toute adjonction d'acide en excès se traduit par une augmentation équivalente de la quantité de H^+ en solution (proportionnalité entre $F(v)$ et le volume d'acide ajouté). A ce stade, la fonction de Gran tend vers une fonction affine avec une pente correspondant à l'activité des ions H^+ (Figure 27). L'extrapolation de cette portion rectiligne jusqu'à une concentration nulle sur l'axe des abscisses permet de déterminer le volume équivalent (V_{eq}).

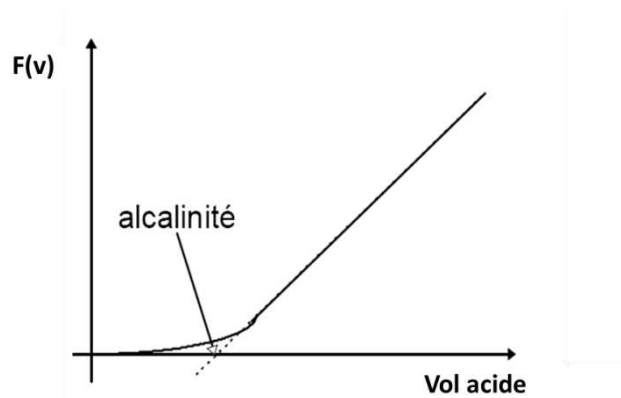


Figure 27 : Illustration de l'allure de la fonction de Gran en fonction de la quantité de proton ajoutée.

Ainsi, contrairement aux moyens usuels précédemment cités (méthode par dérivation), qui requièrent une forte densité de points au voisinage du point d'équivalence, cette méthode n'exploite seulement qu'un jeu réduit de données obtenues après le point de fin de titrage, i.e une quinzaine de point de mesure entre $\text{pH} \sim 4,3$ et $\text{pH} \sim 3,8$.

Cette méthodologie sera donc largement privilégiée dans le cadre des dosages effectués sur le terrain afin de minimiser la durée requise pour chaque opération de dosage.

✓ Expression des résultats

La valeur de l'alcalinité totale, exprimée en millimole par litre de solution, est déterminée à partir du volume équivalent, par la relation suivante :

$$\boxed{Alk = \frac{V_{eq} \cdot [H^+]}{V_0}} \quad (\text{II.17})$$

Dans certains cas de figure, la valeur de l'alcalinité sera directement assimilée à la concentration en ions hydrogénocarbonate (HCO_3^-), moyennant certaines approximations qui seront justifiées le cas échéant.

3.1.2 Dosages des espèces conservatives

3.1.2.2 Dosage du calcium et du magnésium par complexométrie

3.1.2.2.1 Principe général

Les titrages complexométriques sont des méthodes titrimétriques fondées sur la formation de complexes entre un ligand chélatant et un ion, généralement un cation métallique, qui se retrouve fixé au chélateur par des liaisons de coordinations. Pour le dosage des alcalino-terreux présents dans l'eau, l'agent complexant le plus utilisé est le sel disodique de l'acide éthylène-diaminetétraacétique (EDTA) de formule $\text{C}_{10}\text{H}_{16}\text{N}_2\text{O}_8$. Cette molécule est un tétraacide (HY_4), caractérisée par les constantes d'acidité suivantes : $\text{pK}_1=2$, $\text{pK}_2=2,67$, $\text{pK}_3=6,16$ et $\text{pK}_4=10,26$.

La quatrième base conjuguée Y^{4-} est un ligand hexadentate, c'est-à-dire qui possède six sites potentiels de liaison : quatre groupements carboxyliques et deux groupements amine (Figure 28).

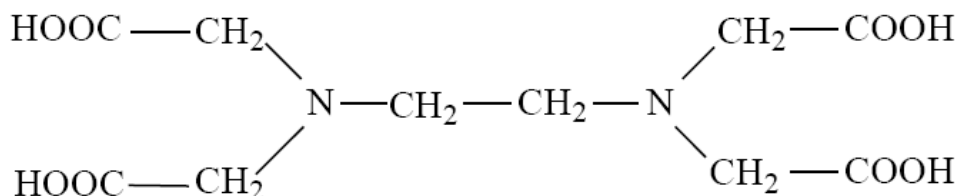


Figure 28 : Formule semi-développée de l'EDTA

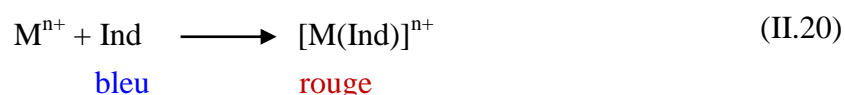
L'EDTA, sous sa forme déprotonée Y^{4-} , se combine avec les ions métalliques M^{n+} dans un rapport stœchiométrique 1 : 1 selon la réaction suivante :



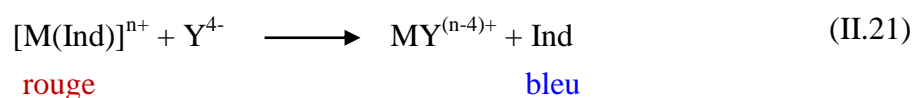
Avec K_{MY} , la constante de stabilité ou de formation du complexe formé :

$$K_{MY} = \frac{[MY^{(n-4)+}]}{[M^{2+}][Y^{4-}]} \quad (\text{II.19})$$

La formation de complexe étant incolore, il convient d'employer des indicateurs complexométriques, qui présentent la propriété d'adopter une couleur différente selon s'ils sont liés au cation ou s'ils sont libres en solution. Dans l'exemple ci-dessous, l'indicateur coloré (Ind) dans la solution à titrer forme avec le cation un complexe coloré, de couleur rouge-bordeaux :



Le principe de détection est basé sur le fait que la constante de stabilité des complexes $[M(\text{Ind})]^{n+}$ est nettement moins élevée (1 à 2 ordres de grandeur) que celle du complexe formé par le cation et l'EDTA. Ainsi, l'adjonction de l'EDTA au cours du dosage en milieu basique va former un complexe incolore avec les ions M^{n+} , beaucoup plus stable que le précédent, ce qui déplace l'équilibre vers ce dernier. Lorsque tout le métal est complexé par l'agent chélatant, l'indicateur se retrouve libre en solution et le mélange se colore en bleu.



3.1.2.2.2 Dosage du calcium

Le dosage du calcium a été effectué par titration automatique à l'aide d'une phototrode (Spectrosense 610 nm, MetrOhm), permettant de déceler et d'enregistrer les changements de couleur du mélange. La solution titrante d'EDTA a été préparée à partir d'une solution certifiée de concentration 10^{-2} M (Titriplex[®] III solution, Merck). L'indicateur coloré utilisé est le CalVer[®]2 (Hach), formulé à base de bleu d'hydroxynaphtol. Au préalable, la solution est portée à pH ultra basique ($\text{pH} > 12$), de façon à éliminer le magnésium qui précipite sous forme d'hydroxyde $\text{Mg}(\text{OH})_2$.

3.1.2.2.3 Dosage simultané des ions calcium et magnésium

Les modalités du dosage des ions Ca^{2+} et Mg^{2+} sont semblables à celles décrites dans le cas du dosage du calcium. La réaction nécessite toutefois de se placer dans un milieu convenablement tamponné à pH 10 (solution tampon $\text{NaHCO}_3/\text{Na}_2\text{CO}_3$, 0,1M) afin de maintenir la concentration en $[\text{Y}^{4-}]$ constante. L'indicateur coloré marquant la fin de la réaction est le Noir d'Eriochrome T (NET). La détermination de la concentration en ions magnésium est déduite en soustrayant la dureté calcique de la dureté totale.

3.1.2.3 Autres déterminations

Les éléments majeurs, i.e dont les concentrations excèdent le mg/l, ont été quantifiés par des méthodes spectrométriques (ICP-AES, spectrométrie d'absorption et spectromètre à flux) et chromatographiques. Les éléments traces, caractérisés par des teneurs inférieures au ppm, ont été analysés par spectrométrie de masse (ICP-MS).

L'analyse de la fraction organique dans les eaux souterraines portent sur :

- les paramètres organiques globaux, tels que le COD (carbone organique dissous), COT (carbone organique total).
- les polluants organiques, lorsque leur présence est suspectée : les molécules recherchées appartiennent à la famille des hydrocarbures aromatiques monocycliques ou BTEX, ainsi qu'au groupe des composés organiques halogénés volatils (COHV).

L'ensemble de ces déterminations a été confiée au laboratoire d'analyse MMA (Monitoring, Métrologie et Analyse) du BRGM. Le tableau 6 dresse la liste des instruments utilisés et des procédures normatives associées à chacune des déterminations.

Par ailleurs, pour des raisons de commodité et de rapidité d'exécution, des kits de dosages (Spectroquant, Merck) ont été utilisés pour la quantification de certaines espèces majeurs (espèces azotées, sulfate, magnésium, COT, chlorure) et ce, principalement lors des essais conduits au niveau du dispositif expérimental de percolation.

Tableau 6 : Quantification des espèces chimiques en solution : techniques analytiques et instrumentation

	Elements	Technique analytique	Norme de référence
Majeurs	Cl, F, NO ₃ , SO ₄	Chromatographie ionique (DIONEX ICS 3000)	NF EN ISO 10304-1
	Ca, Fe, K, Mg, Na, SiO ₂	ICP-AES (ULTIMA 2, HORIBA Jobin-Yvon)	NF EN ISO 11885
	NO ₂	Spectrométrie d'absorption moléculaire (Spectrophotomètre UV visible UNICAM modèle UV2)	NF EN 26777
	NH ₄	Analyse en flux continu (Analyseur Perstorp Analytical Enviroflow 3500)	NF EN ISO 11732
Traces	Ag, Al, As, B, Ba, Be, Cd, Co, Cr, Cu, Li, Mn, Ni, Pb, Sr, Zn	ICP-MS (Série X, THERMO)	NF EN ISO 17294-2
COHV *	1,1-dichloroéthylène, 1,1-dichloroéthane, 1,1,1-trichloroéthane, 1,1,2-trichloroéthane, 1,1,2,2-tétrachloroéthane, 1,2- dichloroéthane, 1,2,c-dichloroéthylène, 1,2-t-dichloroéthylène, bromoforme, dibromochlorométhane, dichlorobromométhane, dichlorométhane, chloroforme, tétrachloroéthylène, tétrachlorure de carbone, trichloroéthylène.	GC-MS ITEX (In-tube Extraction)	NF EN ISO 10301
BTEX *	Benzène, Tolène, Ethylbenzène, Xylène	GC-MS ITEX (In-tube Extraction)	NF ISO 11 423-1
Indicateurs globaux	DBO 5 **	Non communiqué par le sous-traitant	NF EN 1899-2
	COD, COT	Méthode par oxydation persulfate de sodium à chaud (Analyseur COT O.I. Analytical 1010)	NF EN 1484

* IPL santé environnement durables Nord, Lille

** SYPAC Laboratoire - Analyses-Contrôles-Industriels

3.2 Caractérisations des matériaux d'études

L'étude et la maîtrise des interactions eau-roche repose sur une connaissance précise des éléments constitutifs de la matrice solide de l'aquifère. Les réactions potentiellement mises en jeu dans le système sont en effet dictées par la nature des matériaux. C'est pour cela qu'un soin tout particulier a été accordé à la caractérisation des roches utilisées.

3.2.1 Analyse chimique quantitative multiélémentaires

Les analyses chimiques globales, réalisées selon 2 méthodes, aboutissent à une quantification des éléments présents dans la matrice.

3.2.1.2 Analyse par ICP-AES

Les analyses chimiques globales, multiélémentaires, ont été réalisées par spectrométrie d'émission atomique dont la source est un plasma d'argon généré par couplage inductif (ICP-AES de type ULTIMA 2, HORIBA Jobin-Yvon). Elles portent sur les éléments majeurs, représentés sous forme d'oxydes, ainsi que sur les éléments traces, exprimés en mg/kg sous leur forme élémentaire (Tableau 7).

Tableau 7 : Liste des éléments analysés

Eléments majeurs	Al, Ca, Fe, K, Mg, Mn, Na, P, Si, Ti
Eléments traces	Ag, As, B, Ba, Be, Ce, Cd, Co, Cr, La, Li, Mo, Ni, Pb, Sb, Sn, Sr, V, W, Y Zn, Zr

L'analyse chimique exige au préalable l'élimination de la matière organique via une étape de calcination à 450 °C. L'échantillon à analyser subit ensuite une mise en solution alcaline par frittage au peroxyde de sodium (Na_2O_2) à 450°C pendant 1 heure. Après dissolution complète de la matrice, le mélange est repris dans 100 ml d'une solution d'acide chlorhydrique puis analysé par ICP.

3.2.1.3 Analyse par spectrométrie de fluorescence X

L'analyse par fluorescence X requiert la création d'une perle de fusion (Figure 29) obtenue par dissolution de l'échantillon, préalablement réduit en poudre (broyé à 80 μm) et calciné, dans du tétraborate de lithium $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$. Ce procédé de préparation aboutit à la formation d'un disque de verre (ou « perle »), de structure parfaitement homogène et vitreuse analysé ensuite par le spectromètre de fluorescence X.

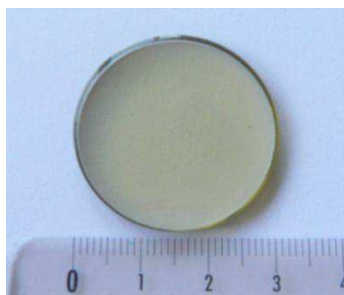


Figure 29 : « Perle de fusion » issue de la phase de préparation de l'échantillon

L'analyse quantitative multiélémentaire est réalisée à l'aide d'un spectromètre séquentiel à dispersion de longueur d'onde (Philips PW2400). L'intensité des raies des différents éléments sont converties en concentration (% massique) par l'intermédiaire d'une gamme d'étalonnage réalisée avec des échantillons de référence certifiés. Les concentrations en éléments majeurs sont conventionnellement exprimés en % d'oxydes par rapport au produit sec.

3.2.2 Analyse minéralogique

Les analyses par Spectrométrie de Diffraction de Rayons X (DRX) ont été réalisées :

- sur poudre désorientée pour l'identification des phases minérales majeures constitutives de la roche totale.
- sur lame orientée pour la mise en évidence de la composition minéralogique des assemblages argileux.

L'ensemble des diffractogrammes de DRX ont été obtenus à l'aide d'un diffractomètre SIEMENS D5000 automatisé équipé d'une anticathode au cobalt. La longueur d'onde utilisée pour le rayonnement X est $\lambda = 1.789 \text{ \AA}$. Les proportions relatives sont estimées à partir de l'aire des pics en utilisant le logiciel DIFFRAC^{plus}. Cette méthode non destructive permet d'identifier les phases cristallines d'un matériau par comparaison du diffractogrammes obtenus avec des échantillons de référence. La résolution de la DRX est limitée aux phases cristallines principales et aux phases secondaires présentes à une teneur supérieure à environ 5% en poids.

✓ DRX sur poudre

Les caractérisations ont été réalisées sur des poudres non orientées, obtenues par concassage puis broyages successifs, de façon à ce que l'échantillon soit réduit à une granulométrie inférieure à 50 μm . Les diffractogrammes sont enregistrés entre 4° et 84° en 2θ (angle d'incidence) avec une résolution angulaire en 2θ de 0.02° ainsi qu'un temps de comptage de 10 s par pas.

✓ DRX sur lame orientée

Les diffractogrammes sont acquis sur des préparations orientées dans lesquelles les particules (fraction < à 2 μm) sont préférentiellement déposées (parallèlement au support) afin

d'augmenter au maximum l'intensité des réflexions des raies (001), caractéristiques des plans basaux des minéraux argileux.

Etant donné que certains minéraux argileux offrent de forte capacité d'expansion au niveau de l'espace interfoliaire, la variation de l'état d'hydratation et/ou de solvation des feuillets expansibles au sein d'un cristal est susceptible de faire fortement varier les positions, les intensités et les largeurs des pics des raies 001. Pour pallier à ce phénomène et procéder à l'identification des phases argileuses, il est nécessaire d'avoir recours à la comparaison des spectres obtenus après 3 types de traitements : échantillon naturel, saturé à l'éthylène glycol en phase gazeuse pendant 12 h (gonflement des espaces interfoliaire), puis chauffé à 490°C pendant 4 heures. Ces différents traitements, exploitant les propriétés de gonflements des argiles, sont communément mis en œuvre dans l'identification des phases argileuses. Le domaine angulaire balayé est compris entre 2 et 36° en 2θ avec une vitesse de balayage de 0.02°/s.

3.2.3 Analyse granulométrique

L'analyse de la distribution granulométrique renseigne sur la répartition des particules en fonction de leurs calibres et fournit ainsi un complément d'informations utiles au niveau du milieu poreux (arrangement des grains, indication sur les paramètres hydrodynamiques, ...).

Compte tenu de la faible proportion d'éléments fins dans l'ensemble des échantillons analysés (proportion inférieure à 10% en poids), les mesures de distributions granulométriques ont intégralement réalisées par tamisage en voie sèche, conformément aux exigences de la norme NF ISO 3310-10. Les sédiments ont été, au préalable, séchés à 40°C durant 48h.

Les pourcentages des passants cumulés permettent l'établissement d'une courbe de distribution granulométrique en portant les ouvertures des tamis en abscisse, sur une échelle logarithmique, et les pourcentages en ordonnée, sur une échelle arithmétique.

3.2.4 Analyse pétrographique

L'étude pétrographique a été menée au niveau de sections polies au moyen d'un microscope polarisant de type Olympus BH2 doté d'une caméra Leica DFC450. Pour chaque échantillon, une série de 2 lames minces a été réalisée, l'une sur la fraction grossière (fraction >1,25 mm), et l'autre, sur la fraction fine (particules <1,25 mm), afin d'appréhender l'éventuelle ségrégation des minéraux en fonction du diamètre des particules.

L'examen des lames minces permet d'apporter de précieuses informations sur la composition minéralogique, particulièrement en ce qui concerne les minéraux présents à l'état de traces, mais permet également d'apprécier la structure des minéraux, leur état d'altération (hydrolyse, dissolution, oxydation), de relever la présence de singularité (présence d'inclusions, de bioclastes,...) ou encore de fournir des indications quant à leur provenance.

Cette approche purement descriptive a également été accompagnée d'une évaluation des proportions minérales par comparaison visuelle avec une charte graphique.

3.2.4 Détermination de la capacité d'échange cationique (CEC)

La CEC caractérise l'aptitude d'un sol ou d'un sédiment à retenir les cations sous forme échangeable. Elle correspond à la somme des sites d'échange occupés par des cations (Ca, Mg, K, Na principalement) positionnés sur la surface externe des minéraux argileux ainsi qu'au niveau des espaces interfoliaires.

La détermination de la CEC a été effectuée en employant la méthode de mesure au chlorure de cobaltihexamine, molécule organique présentant une forte affinité pour les sites d'adsorption. La fraction argileuse du sédiment est mise en suspension dans une solution de cobaltihexamine pendant une période de 24h, au cours de laquelle les ions cobaltihexamine vont se substituer avec les cations échangeables qui se retrouvent en solution.

La quantité de molécule de cobaltihexamine absorbée, correspondant à la valeur de la CEC, est déduite de la mesure par spectrophotométrie d'absorption (Varian, Cary WinUV, $\lambda=475$ nm) de la quantité de molécule restante dans le surnageant.

En complément des analyses colorimétriques, la population de cations libérés en solution (Ca, Mg, K, Na) est dosée par spectrométrie d'absorption atomique.

3.2.5 Autres déterminations

- La perte de poids à 450 °C, qui évalue le pourcentage de matière organique présente dans le matériau
- La perte au feu à 1000°C, renseignant sur la proportion de composés volatils

➤ Le carbone total, le carbone organique et le soufre total ont été analysée au LECCO. Le principe consiste à mesurer par infrarouge les gaz (CO_2 , SO_2) dégagés suite aux traitements spécifiques propres à chaque détermination :

- attaque acide (acide phosphorique) pour le dosage du carbone inorganique.
- oxydation thermique à 900°C dans un flux contenant de l'oxygène pour le dosage du soufre total et du carbone total. Les teneurs en carbone organique sont déduite des mesures précédents ($C_{\text{org}} = C_{\text{tot}} - C_{\text{inorg}}$).

3.2.6 Reconstitution de l'assemblage minéralogique par modélisation

Sur la base des informations collectées, une reconstitution quantitative probable et cohérente du cortège minéralogique a été opérée au moyen d'un code spécifique développé au BRGM (MINEV) permettant de concilier les bilans de matière (Blanc et al., 2006, 2007, 2010). La démarche adoptée est brièvement explicitée ci-dessous ; elle se décompose en trois étapes :

- Saisie des données issues des résultats des analyses quantitatives, incluant également les états redox (spéciation) sous lesquels certains éléments sont susceptibles de se trouver (espèces du fer et de l'azote principalement). En dehors de l'analyse chimique globale, d'autres propriétés sont introduites telles que la perte au feu, la CEC, ... qui vont permettre de contraindre plus finement les calculs.

- Sélection des minéraux dans la base de données minéralogiques, qui récence les caractéristiques de plus de 450 formes minérales distinctes. L'ensemble des phases minérales détectées à l'issue des analyses DRX ont été systématiquement introduites dans l'assemblage. Cependant, cet assemblage minéralogique « initial » peut s'avérer insuffisant pour faire correspondre l'ensemble des éléments chimiques. En effet, compte tenu des limites de détection inhérentes aux méthodes employées (~5% en moyenne en DRX), certaines phases minérales accessoires peuvent être masquées par les phases majeures de la matrice. Il convient alors de procéder à un balayage de l'ensemble des minéraux de la base de données, de sorte à inclure certaines phases minérales dont la présence semblerait vraisemblable dans la matrice. Par exemple, s'il est indiqué que le matériau contient du baryum, l'ensemble des minéraux de la base de données contenant cet élément seront examinés afin d'affecter cet élément à la forme minérale la plus pertinente dans le cortège final, en fonction de la connaissance du milieu (conditions redox du système, type de milieu...). Dans la majorité des cas, les minéraux accessoires ajoutés proviennent de phases identifiées lors des observations

complémentaires au microscope polarisant (feldspaths alcalins, potassiques, goethite, muscovite, biotite...).

- Calcul de la spéciation :

Le principe général du calcul consiste à minimiser la somme des carrés des écarts entre les compositions chimiques globales calculées et mesurées, en ajustant les proportions des différentes phases minérales retenues dans l'étape précédente. La somme des carrés des écarts (SCE) entre la concentration observée en élément i , $C_{i,obs}$, la concentration calculée, $C_{i,calc}$, et l'incertitude, Inc_i , est donnée par la relation suivante :

$$SCE = \sum_i \frac{(C_{i,obs} - C_{i,calc})^2}{Inc_i^2} \quad (II.22)$$

L'incertitude est calculée à partir de la précision analytique et du seuil de détection retenu pour chacune des mesures. L'outil offre également la possibilité de contraindre les proportions de minéraux en fonction des ordres de grandeur fournies par les analyses DRX.

Il y a toutefois lieu de remarquer que la composition théorique reconstituée par le code de calcul ne prétend pas représenter rigoureusement le cortège minéralogique initial de l'échantillon. La démarche se limite à proposer une estimation réaliste en s'appuyant sur une approche rationnelle et cohérente.

3.3 Microbiologie

3.3.1 Dénombrement de la biomasse bactérienne

3.3.1.1 Bactéries totales

La technique de numération utilisée est une méthode rapide de dénombrement des bactéries qui utilise la filtration sur membrane et la microscopie en épifluorescence. Celle-ci consiste à marquer les bactéries par un fluorochrome, l'acridine orange, possédant la propriété de réagir spécifiquement avec les acides nucléiques (ADN et ARN) permettant ainsi de dénombrer l'ensemble de la communauté (microflore totale).

Les échantillons d'eau sont concentrés sur un filtre stérile noir en polycarbonate (Millipore, 0,2 μm de porosité, 25 mm de diamètre), préalablement humecté avec quelques gouttes de surfactant (Triton X-100 à 0.5%) puis rincés avec une solution de NaCl 0,1M, dans le but de

réduire l'hydrophobicité du filtre et d'assurer ainsi une répartition homogène des bactéries au niveau de la membrane. On dépose ensuite sur la membrane 200 µl d'une solution d'Acridine Orange (1% p/v dans 100 ml de tampon phosphate 0,1 M pH 6,6) et 800 µl d'une solution de NaCl 0,1M, de manière à obtenir une concentration final en acridine de 0,2%). Le mélange est maintenu à l'obscurité et à température ambiante durant 30 min minimum pour permettre la fixation du colorant sur les cellules bactériennes. La colonne est ensuite rincée avec une solution de tampon citrate/phosphate (0,1 M pH 6,6) stérile. Les filtres sont ensuite séchés puis montés entre lame et lamelle et examinés au microscope optique à épifluorescence (Zeiss-Axio Imager MAT), à l'objectif à immersion (x100). Après examen de l'homogénéité de la répartition des cellules sur le filtre, la numération est effectuée sur au moins 10 champs oculaires choisis aléatoirement, comprenant chacun généralement entre 10 et 100 cellules bactériennes. Le nombre de bactéries par millilitre d'échantillon (N) se déduit de la formule suivante :

$$N = \frac{n.S}{s.v} \quad (\text{II.23})$$

Avec : n = moyenne de bactéries dénombrées dans 10 champs oculaires
 S = surface filtrante (mm²)
 v = prise d'essai (ml)
 s = surface d'un champ oculaire (mm²)

Pour chaque échantillon, deux numérations ont généralement été effectuées, le nombre final de bactéries étant la moyenne des dénombrements des deux échantillons.

3.3.1.2 Germes pathogènes et indicateurs

La recherche de germes pathogènes et d'indicateurs de contaminations fécales, dont le développement pourrait être stimulé par le réchauffement des eaux, a été sous-traitée à différents laboratoires d'analyse sélectionnés à proximité des sites d'études (IPL santé, environnement durables Méditerranée, Nîmes ; CARSO- Laboratoire Santé Environnement et Hygiène de Lyon). La méthodologie employée pour chaque détermination est indiquée dans le tableau ci-dessous (Tableau 8) :

Tableau 8 : Germes pathogènes et indicateurs de contamination fécale - méthodes d'évaluation.

Paramètres analytiques	Méthodes
Microorganismes aérobies à 36°C	NF EN ISO 6222
Microorganismes aérobies à 22°C	NF EN ISO 6222
Coliformes à 36 °C	NF EN ISO 9308-1
Escherichia coli	NF EN ISO 9308-1
Entérocoques (Streptocoques fécaux)	NF EN ISO 7899-2
Spores de bactéries sulfito-réducteurs	NF EN ISO 726461-2
Légionnelles	NF T90-431

3.3.2 Détermination de la diversité bactérienne

L'évaluation de la diversité bactérienne a été réalisée sur la base d'une approche CE-SSCP (Orita *et al.*, 1989 ; Delbès *et al.*, 2000). Cette méthode repose sur la migration différentielle de séquences d'ADN monocaténares de taille identique en condition non dénaturante. Les différences de migration électrophorétique sont fonction de la conformation tridimensionnelle de l'ADN monocaténaire, directement liée à sa séquence nucléotidique. Pour chaque échantillon, on obtient un chromatogramme des communautés bactériennes, dans lequel chaque pic correspond à une séquence unique et donc, à une espèce bactérienne, dans le cas de l'ARNr 16S. Cette technique présente l'avantage de s'affranchir des méthodes culturales, réputées pour leur manque de représentativité dans des écosystèmes naturels complexes comme les aquifères (Amann *et al.*, 1995).

3.3.2.1 Extraction et quantification de l'ADN génomique

À l'issue de chaque campagne de prélèvement, environ trois litres d'eau ont été collectés par ouvrage puis concentrés sur une membrane de nitrocellulose (Millipore, de 0,2 µm de porosité). L'extraction d'ADN génomique a été réalisée, après découpage des filtres en portions d'environ 2 mm², à l'aide du kit FastDNA® SPIN for Soil (Bio101). Les ADNs extraits ont ensuite été quantifiés sur microplaque à l'aide d'un fluorophore, le SYBR Green I suivant la méthode développée par Leggate *et al.* (2006).

3.3.2.2 Amplification par PCR et analyse de la structure des communautés par CE-SSCP

L'amplification par PCR de la région V3 du gène codant l'ARNr 16S a été effectuée à l'aide du couple d'amorces w49 (5'-ACG GTC CAG ACT CCT ACG GG-3') et w34 (5'-TTA CCG CGG CTG CTG GCA C-3'), marquée à l'extrémité 5' par le fluorochrome FAM. Les amplicons (1 µL dilué 20 à 100 fois) sont ensuite placés dans une solution contenant 18 µL de formamide et 1 µL de standard interne Genescan-600 LIZ (Applied Biosystems), puis dénaturés par chauffage (5 mn à 95 °C) et refroidis rapidement (10 min dans de la glace). Les profils de diversité sont ensuite obtenus par CE-SSCP dans un séquenceur ABI Prism 310 (Applied Biosystems), en utilisant Genescan-600 LIZ (Applied Biosystems) en appliquant les conditions d'électrophorèse suivantes : capillaire de 47 cm, température de 32 °C, voltage de 10 kV. La correction de l'alignement par rapport à la migration du standard interne et la normalisation des électrophorégrammes ont été réalisées avec le logiciel StatFingerprints (Michelland *et al.*, 2009).

3.3.3 Mesure d'activité

3.3.3.1 Activité globale

3.3.3.1.1 Activité déshydrogénase

Les déshydrogénases concernent un vaste pool enzymatique impliqué dans les réactions biochimiques de transfert d'électrons à l'intérieur des cellules. Etant donné que l'activité biologique repose sur des cascades de réactions d'oxydo-réduction, la capacité de mesure de cette activité est grandement utile pour estimer le potentiel respiratoire et donc, le statut biologique du milieu (activité globale). L'activité respiratoire peut être détectée en utilisant des accepteurs d'électrons artificiels tels que le CTC (5-cyano-2,3- dotolyl tetrazolium chloride) ou l'INT (2 (p-iodo-pheny)-3-(p-nitropheny)-5-phenyl tetrazolium chloride) qui sont réduits en composés facilement quantifiables lors de leur passage dans la chaîne respiratoire. Cette méthode est sensible et non sélective car aucun substrat n'est requis pour la réaction. Elle a été éprouvée sur de nombreuses de matrices environnementales, notamment sur les sols (Mersi & Schinner, 1991), les sédiments (Butler *et al.*, 1997), les environnements marins (Johnstone & Jones 1988). Certaines études ont montré une bonne corrélation entre l'activité INT-réductase et certaines variables comme la consommation d'oxygène (Trevors, *et al.*,

1982), ou encore l'émission de CO₂ (Włodarczyk *et al.*, 2002) par exemple. Cette technique a également été employée avec succès pour évaluer la toxicité de certains polluants (Tam, 1998) ou encore pour déterminer la proportion de bactéries métaboliquement actives en microscopie (Zimmerman *et al.*, 1978 ; Dufour et Colon, 1992).

L'examen de la littérature fait ressortir que chaque auteur adapte plus ou moins la méthode selon ses besoins. Nous ne dérogerons pas à la règle étant donné qu'il n'existe pas, à notre connaissance, de protocole établi pour évaluer l'activité déshydrogénase dans les eaux souterraines, où la biomasse est très réduite en comparaison avec d'autres écosystèmes.

L'activité déshydrogénase a été évaluée via l'utilisation du 2 (p-iodo-phenyl)-3-(p-nitrophenyl)-5-phenyl tetrazolium chloride (INT). Un volume de 50 ou 100 mL d'eau souterraine a été concentré sur une membrane de nylon (0,22 µm, Whatman) puis le filtre a été incubé dans l'eau souterraine filtrée à 0,02% d'INT durant 24h à différentes températures et à l'obscurité. Le pH a été ajusté au voisinage de pH 7 avec de l'HCl 0,1M. La même expérience a été menée en ajoutant 10 ppm d'extrait de levure à la solution. A l'issue de la période d'incubation, les tubes ont été centrifugés (5', 4 000 tr.min⁻¹) afin d'éliminer le surnageant puis l'INT-formazan insoluble a été extrait en ajoutant 5 mL d'acétone et en laissant reposer 4 h à l'obscurité (agitation ponctuelle toutes les heures). L'absorbance a été ensuite mesurée à 465 nm et la quantité d'INT réduit a été déduite d'une courbe de calibration. Toutes les expériences ont été conduites en triplicats.

3.3.3.1.2 Activité hydrolytique

L'activité hydrolytique a été déterminée en mesurant le produit de la conversion enzymatique du FDA en fluorescéine par spectrophotométrie. Cet essai est considéré comme non spécifique car il est sensible à l'activité de différentes catégories d'enzymes, telles que les protéases, lipases ou estérases (Adam et Duncan, 2001). Comme la capacité d'hydrolyse est largement répandue dans le monde microbien, cette méthode a donc été employée dans une gamme variée d'échantillons tels que par exemple les sols (Schnürer et Rosswall, 1982), les sédiments (Battin, 1997), les boues activées (Jorgensen, et al., 1992), ou encore les composts (Ntougias *et al.*, 2006).

Etant donné que cet essai est généralement effectué sur une matrice solide (sol, sédiment, etc), le protocole a dû être adapté à nos besoins. Les bactéries sont, au préalable, concentrées sur une membrane en polycarbonate (Millipore, 0,2 µm de porosité, 25 mm de diamètre) à partir

d'un volume d'eau de 1 L, puis les filtres sont incubés en triplicats dans 25 mL d'une solution tampon phosphate (60 mM, pH 7,6) stérile additionnée de FDA (concentration finale 10 µg/mL) durant 12h. Un lot témoin est également constitué afin de corriger l'absorbance induite par l'hydrolyse chimique du composé. L'absorbance des échantillons est ensuite mesurée à 490 nm et comparée à une gamme standard.

3.3.3.3 Profils de minéralisations de substrats carbonés

Le suivi de la minéralisation de différents substrats carbonés a été effectué à l'aide de microplaques commerciales EcoPlatesTM développées par BIOLOG (Inc., Hayward, CA). Celles-ci comportent un jeu de 3 répliquats de 31 substrats carbonés, appartenant à différentes à différentes familles chimiques (Tableau 9) et adaptés à des applications courantes en écologie (Preston-Mafham *et al.*, 2002). La métabolisation des différents substrats est révélée à travers la réduction d'un indicateur redox à base de tétrazolium qui produit un composé fluorescent lorsqu'il est réduit par voie chimique ou biologique, et qui peut être facilement quantifié par spectrophotométrie.

Tableau 9 : Liste des 31 sources de carbones présentes dans les microplaques EcoPlatesTM Biolog. (Choi & Dobbs, 1999)

Amines	Carbohydrates	Acides carboxyliques	Polymères
Phenylethyl-amine	α-D-lactose	α-Ketobutyric acid	2-Hydroxy benzoic acid
Putrescine	β-Methyl-D-glucoside	D-Galacturonic acid	4-Hydroxy-benzoic acid
	D-Cellobiose i-erythritol	D-Glucosaminic acid	
Acides aminés	D-Galactonic acid-γ-lactone	D-Malic acid	Composés phénoliques
L-Arginine	D,L-α-Glycerol phosphate	Itaconic acid	α-Cyelo dextrin
L-Asparagine	D-Mannitol	Pyruvic acid methyl ester	Glycogen
L-phenylalaninen	D-Xylose	γ-Hydroxy-butyric acid	Tween 40
L-sérine	Glucose-1-phosphate		Tween 80
L-thréonine	I-Erythritol		
Glycyl-L-glutamin acid	N-Acetyl-D-glucosamine		

Les plaques ont été inoculées directement avec l'eau de la nappe puis incubées en duplicat à différentes températures. Un lot témoin a également été réalisé en utilisant de l'eau du site filtrée à 0,2 µm. Le suivi de la densité optique (DO₅₉₀ nm) a été opéré toutes les 24 heures durant 8 jours. L'activité métabolique moyenne des plaques (développement moyen de la

coloration des puits ou DMCP) a été calculée à partir des valeurs d'absorbance selon la relation suivante :

$$DMCP_{(t)} = \frac{\sum(C_{(t)} - R_{(t)})}{n} - FC \quad (II.24)$$

Avec, t = temps d'incubation, C(t) = coloration moyenne produite pour un substrat à l'instant t, R(t) = coloration moyenne produite pour le puits de contrôle à l'instant t, n = nombre de substrats présents (31) et FC = Facteur de correction correspondant à l'absorbance moyenne de la plaque témoin pour chaque substrat.

Les analyses cinétiques du développement de la coloration ont été effectuées en appliquant le modèle de Gompertz modifié (Zwietering, *et al.*, 1990). L'absorbance à un instant t, ou $y_{(t)}$, est obtenu d'après la relation suivante :

$$y_{(t)} = A \exp \left[- \exp \left(\frac{\mu_m}{A} (\lambda - 1) + 1 \right) \right]_{(t)} \quad (II.25)$$

où A représente l'absorbance maximale dans un puits (asymptote), μ_m la vitesse maximale de développement de la couleur et λ , le temps de latence.

Les données expérimentales ont été ajustées au modèle empirique à l'aide de l'outil Solveur d'Excel.

4. Traitements des résultats

4.1 Analyses statistiques

4.1.1 Tests non paramétriques

Les tests non paramétriques correspondent à une famille de tests statistiques qui ne présupposent pas une distribution normale des données. Les tests paramétriques classiques s'appuient en effet sur un ensemble d'indicateurs (moyenne, écart-type, variances, ect) qui ne sont valides que sous certaines conditions (distribution normale, homogénéité des variances), difficilement vérifiables dans le cas où les effectifs sont limités (*i.e.* inférieurs à 30). Il convient alors d'avoir recours à un ensemble de tests ne comportant pas d'exigences sur la distribution des données (distribution libre), *i.e.* les tests qualifiés de non paramétriques.

Les tests de Kruskal-Wallis et Mann Whitney ont été utilisés pour comparer les échantillons entre eux ou deux à deux. Le test de corrélation de Spearman a été appliqué pour évaluer le degré de corrélation entre deux variables quantitatives. Dans le cas d'observations

indépendantes, des tests de permutation ont également été mis en œuvre. Cette méthode permet de redistribuer les valeurs observées au hasard et de recalculer la valeur de la statistique pour chacune des permutations. La distribution des valeurs simulées sont ensuite confrontées aux données observées afin de valider ou rejeter l'hypothèse testée. L'ensemble de ces tests ont été réalisés à l'aide du logiciel StatXact-9® (Cytel Software Corporation).

4.1.2 Analyses multifactorielles

Les analyses multifactorielles ont été réalisées dans le cadre de ce mémoire, avec le logiciel XLSTAT-Pro 2012 ainsi que sous R (R-Development-Core-Team 2004), avec le package ADE4 (Thioulouse *et al.*, 2004).

4.1.2.1 Analyse en composante principale

L'analyse en composante principale (ACP) est une méthode de projection offrant la possibilité de visualiser un jeu de données dans un nombre réduit de dimension. Le principe consiste à réduire la variance d'un système en un nombre réduit de facteurs, non corrélés entre eux, permettant d'expliquer le maximum de variabilité. Ces nouvelles variables, ou composantes principales, définissent des plans factoriels qui servent de base à une représentation graphique des variables initiales. Cela permet, lorsque le nombre d'individu et de descripteurs est important, de procéder à une analyse exploratoire des données et d'extraire les principales tendances du système. En raison de l'hétérogénéité des descripteurs quantitatifs (pH, concentration, etc), les différentes variables ont été préalablement centrées et réduites, de façon à faciliter les comparaisons.

4.1.2.2 Analyse en co-inertie

Des analyses en co-inertie ont été mises en œuvre pour croiser les informations obtenues à partir de l'étude de la structure génétique des communautés bactériennes et des variables environnementales. A partir de l'analyse séparée des variables biotiques et abiotiques par des méthodes factorielles (type ACP), l'analyse de co-inertie recherche des paires d'axes de co-inertie qui présentent une covariance maximale. Elle aboutit à une projection simultanée, dans un nouvel espace commun, des informations découlant des plans factoriels précédents.

L'analyse comporte également un test de Monte-Carlo, qui permet d'évaluer le degré de significativité des plans de co-inertie. Ce test consiste à effectuer une série de permutations aléatoires (999) au niveau des échantillons (lignes des tableaux de données) et de comparer les co-inerties obtenues après permutation avec celle observée dans l'analyse. Ce test permet de conclure sur la présence ou l'absence de co-structure entre les informations croisées.

4.2 Modélisation hydrogéochimique

Le code de calcul géochimique PHREEQC (Parkhurst & Appello, 1999), associé à la base de données thermodynamique THERMODDEM (www.thermoddem.brgm.fr) entretenue par le BRGM, ont été utilisés dans le cadre de ces travaux. Ce programme permet de simuler et de modéliser une grande variété de processus réactionnels qui régissent la qualité des eaux souterraines tels que par exemple les réactions de dissolution/précipitation, le calcul des activités des espèces chimiques, les échanges gazeux, les échanges ioniques, etc. Dans le cadre de ces travaux, les modélisations effectuées concernent :

➤ Le calcul de spéciation aqueuse : il s'agit d'un calcul thermodynamique permettant d'appréhender la distribution des différentes formes chimiques sous lesquelles vont se trouver les différents éléments. Cette description du système s'appuie sur les données expérimentales acquises sur le terrain et en laboratoire (analyses des eaux et des matrices sédimentaires) et permet par la suite d'en déduire par exemple l'équilibre de charge (balance ionique), l'état de saturation de l'eau vis-à-vis des phases minérales d'intérêt (indices de saturations), les équilibres avec la phase gazeuse, ou encore l'état d'oxydoréduction de la solution.

➤ La modélisation d'un scénario donné : cette stratégie permet d'appréhender la réactivité du système en fonction des conditions initiales et des paramètres imposés en entrée (équilibre avec la phase solide, avec une pression partielle de gaz fixée, etc.). En pratique, elle a consisté principalement à modéliser le comportement des associations matrices sédimentaires-eaux souterraines en condition statique et dynamique sous différents niveaux de température.

Chapitre III :

**Approche à l'échelle d'une
installation isolée
(Balandran, Gard)**

1. Cadre général de l'étude

1.1 Projet Serre capteur d'énergie

Le projet « Serre capteur d'énergie » a été initié en 2007 pour une durée de 5 ans et a réuni 9 partenaires publics et privés, dont le Ctifl (Centre technique interprofessionnel des fruits et légumes) et le BRGM. L'objectif général du projet consiste à évaluer la faisabilité d'un stockage intersaisonnier d'énergie thermique en aquifère pour le chauffage et la climatisation de serres maraîchères, au niveau de 3 installations expérimentales situées en Languedoc-Roussillon (site du Ctifl à Balandran) et en région Provence-Alpes-Côte d'Azur (site de la Crau et d'Aubignan).

La contribution du BRGM à la phase initiale du projet consistait à la caractérisation hydrogéologique des 3 sites concernés dans le but de dimensionner un éventuel dispositif de stockage d'énergie thermique en aquifère. Le site le plus favorable, du point de vue hydrogéologique, fut le centre du Ctifl de Balandran. Un avis réservé a toutefois été émis quant à la faisabilité d'un tel dispositif de stockage, compte tenu notamment de la présence d'un écoulement marqué de la nappe au droit du site, susceptible de compromettre l'efficacité du stockage en aquifère.

Cependant, le choix de l'implantation d'un tel dispositif n'a pas été seulement dicté par les seules considérations hydrogéologiques. Les principaux objectifs du projet sont en effet axés sur l'étude d'un nouveau mode de gestion du climat de la serre induit par la présence de l'installation géothermique (système fermé permettant de maintenir un niveau de CO₂ élevé, nouveau matériau, meilleure maîtrise du climat) au niveau du comportement des cultures, des rendements de production ou encore du bilan énergétique. De plus, le contexte hydrogéologique du Ctifl est assez représentatif de celui « de référence », visé par la présente étude (aquifères peu profond sous faible couverture). Enfin, l'originalité de ce projet atypique, sans équivalent en France, permet à l'installation de faire office de site de démonstration du concept.

Dans ce contexte, il a donc été convenu d'implanter le dispositif de stockage thermique sur le site du Ctifl avec la construction en 2008-2009, de la serre expérimentale pilote. Le BRGM était en charge du dimensionnement des ouvrages souterrains, du suivi de la foration et de l'aménagement du site en vue du suivi.

1.2 Principe du mode de stockage thermique envisagé

La technologie décrite ci-dessous s'inspire de celle mise en œuvre dans d'autres pays européens, notamment aux Pays-Bas, pour la thermo-régulation de serres agricoles. Il s'agit dans ce cas d'un doublet géothermique réversible fonctionnant alternativement en pompage ou réinjection suivant le cycle annuel, dans le but de stocker périodiquement l'excédent d'énergie solaire captée par la serre, et la restituer lors des périodes où celle-ci fait défaut (période hivernale).

Le principe de fonctionnement est le suivant (Figure 30):

- En mode de fonctionnement estival, l'eau souterraine est tout d'abord extraite d'un premier forage (« puits froid »), emmagasine les calories piégée par la serre via un système d'échangeurs thermiques, puis est réinjectée dans le même aquifère *via* le second forage ou « puits chaud ».
- En mode hivernal, le système s'inverse pour tirer profit du stock d'eau chaude constitué lors de la recharge estivale. L'eau est pompée dans le puits chaud, réchauffe la serre en se refroidissant, et est réinjectée dans l'aquifère pour être réutilisé l'été suivant.

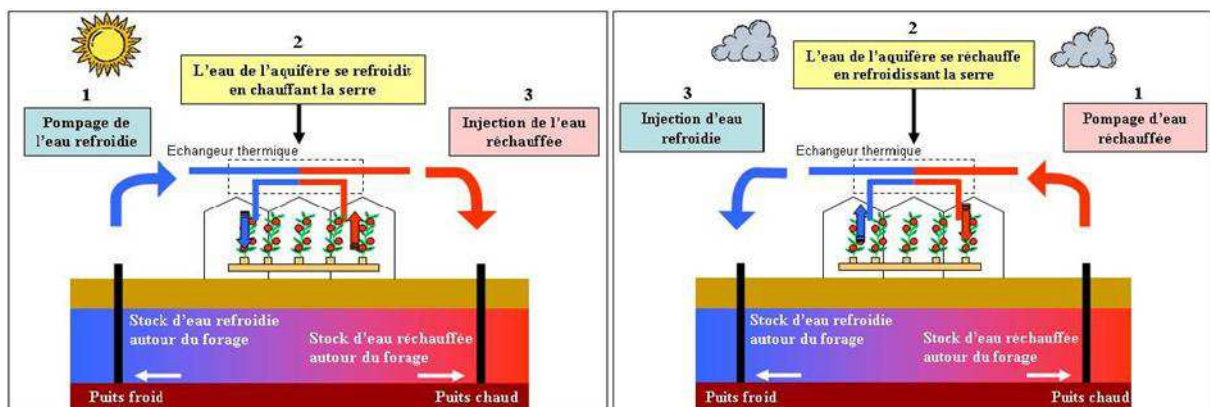


Figure 30 : Illustration du principe de stockage thermique en aquifère appliqué au chauffage et refroidissement d'une serre (source : Courtois et al., 2008)

Hormis les gains énergétiques évidents par rapport aux méthodes conventionnelles, cette technique présente l'avantage de permettre une excellente gestion du climat de la serre (diminution du gradient de température jour/nuit, maintien d'une température relativement constante qui n'excède pas 25 à 30 °C l'été), favorable à la croissance des cultures de tomates.

1.2 Objectif de la présente étude

Les investigations effectuées dans le cadre de ces travaux s'inscrivent dans la dernière phase du projet, portant sur le suivi de l'expérimentation au niveau site. Depuis 2010, deux campagnes annuelles de culture de tomates ont été menées en ayant recours au dispositif de chauffage / refroidissement par la nappe. Cette phase d'exploitation a été mise à profit dans le cadre de cette thèse pour élaborer un suivi des aspects qualitatifs de la nappe au droit du site expérimental.

2. Présentation du site expérimental

Cette partie s'attache à décrire succinctement les principaux éléments constitutifs du dispositif expérimental qui s'avéreront utiles pour l'interprétation des données expérimentales de suivi de nappe. La configuration du dispositif de suivi sera également développée.

2.1 Description de l'installation pilote

2.1.1 Serre capteur

Celle-ci est constituée de matériau en verre et présente une surface utile de 960 m². La comparaison des performances énergétiques est effectuée par rapport à une serre Témoin, identique en tout point à la serre capteur (surface et densité de culture, etc), mais pourvue d'un système de thermorégulation conventionnel (chauffage au gaz).

2.1.2 Circuit primaire

L'installation est dotée de 2 forages réversibles équipés d'un dispositif mixte de pompage et de réinjection. Ces forages ont une capacité nominale de 50 m³/h. Les tubages sont en acier inoxydable pour prévenir tout risque éventuel de corrosion.

2.1.3 Circuit secondaire

Les principaux équipements sont énumérés ci-dessous :

- ✓ Pompe à chaleur réversible eau-eau qui assure le refroidissement et le chauffage de la serre

✓ Centrales de traitement d'air (CTA), installées à l'intérieur des serres, qui permettent de diffuser les frigories ou les calories à l'intérieur de la serre. L'air réchauffé ou refroidi par les CTA circule le long de la serre à travers des gaines textiles suspendues sous les rangées de culture.

✓ Ballons de stockage journaliers, d'une capacité de 30 m³ chacun, qui servent de réservoir tampon journalier (3 ballons coté chaud et 3 autres coté froid). La présence de ces ballons de stockage intermédiaires insérés dans le circuit secondaire vise à minimiser la durée de fonctionnement des pompes de forages (économie d'énergie).

✓ Echangeurs thermiques à plaques, permettent d'isoler le circuit d'eau en provenance de l'aquifère (circuit primaire) du circuit secondaire.

2.1.4 Exemple de fonctionnement en mode climatisation

Afin de cerner la contribution relative des différents équipements au processus de régulation de climat de la serre, un exemple de fonctionnement en mode climatisation est proposé ci-dessous (Figure 31).

En été, le dispositif de géothermie sur aquifère sert à refroidir la serre. En principe, le réseau des CTA devait être directement alimenté par l'eau provenant du puits froid (free cooling). Ce mode de rafraîchissement direct n'a guère été employé puisque les performances des CTA se sont révélées nettement inférieures par rapport à celles annoncées par le constructeur. En pratique, la PAC a été utilisé pour refroidir davantage les ballons froids (température voisine de 4-5 °C) rejetant simultanément de l'eau aux alentours de 30 °C dans les ballons chauds. Le doublet géothermique est ensuite utilisé pour déstocker la chaleur contenue dans les ballons chauds, une fois que ces derniers ont atteint une température de consigne. Dans cette configuration, de l'eau à environ 15 °C est puisée dans le puits froid, cède ses frigories au circuit secondaire (ballons) puis est réinjectée à une température voisine de 25°C.

En conséquence, l'injection de chaleur dans la nappe ne se fait que ponctuellement, entre 2 à 3 heures par jour, généralement en fin de journée.

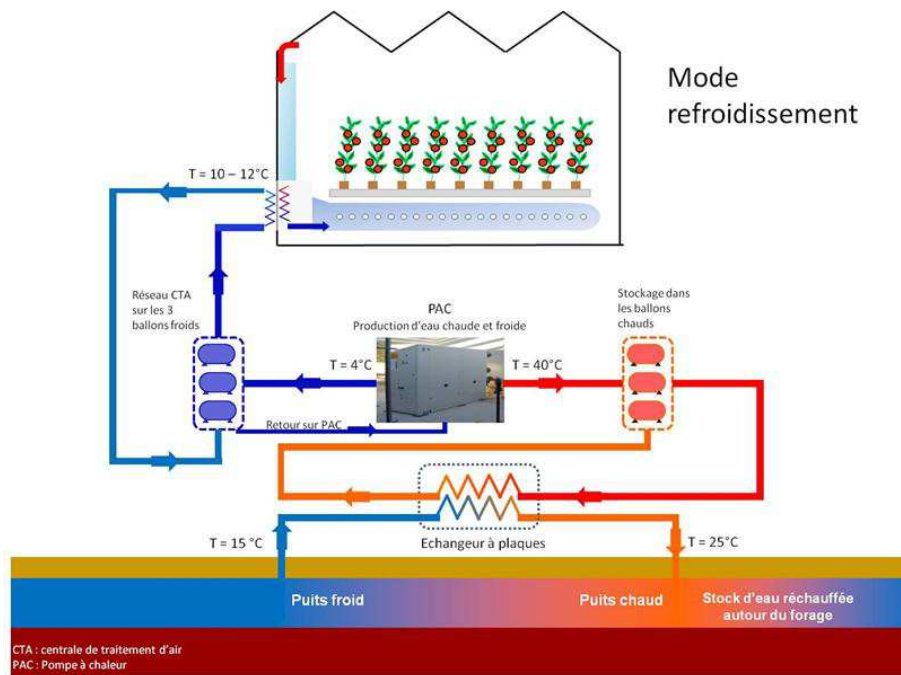


Figure 31 : Schéma synoptique du dispositif expérimental en mode rafraîchissement

2.2 Configuration du dispositif de suivi

Le doublet géothermique puits chaud/puits froid est positionné perpendiculairement à l'écoulement naturel de la nappe. La distance séparant les deux ouvrages a été calculée, à partir du mode d'exploitation et des propriétés de l'aquifère, de manière à éviter toute influence réciproque lors de la phase d'exploitation (interférence entre stock « chaud » et stock « froid »).

Afin de permettre de suivre la propagation du panache thermique dans la nappe et les éventuelles conséquences sur la qualité de l'eau, un réseau de contrôle constitué de piézomètres de suivi, a été implanté dans la zone présumée d'influences des forages d'exploitation. Ceux-ci ont été majoritairement répartis du côté « puits chaud » (forage F1), dans le but d'évaluer l'influence d'un réchauffement de la nappe. Ils ont été positionnés dans l'axe de l'écoulement naturel de la nappe, en amont et en aval du puits F1, selon le schéma d'implantation décrit en figure 32. On distingue :

- Piézomètre SP1, implanté en amont du forage F1 (~30 m)
- Piézomètre SP2, situé en aval immédiat du forage F1 (~ 30 m)
- Piézomètre SP3, positionné en aval lointain du forage F1 (~120 m)

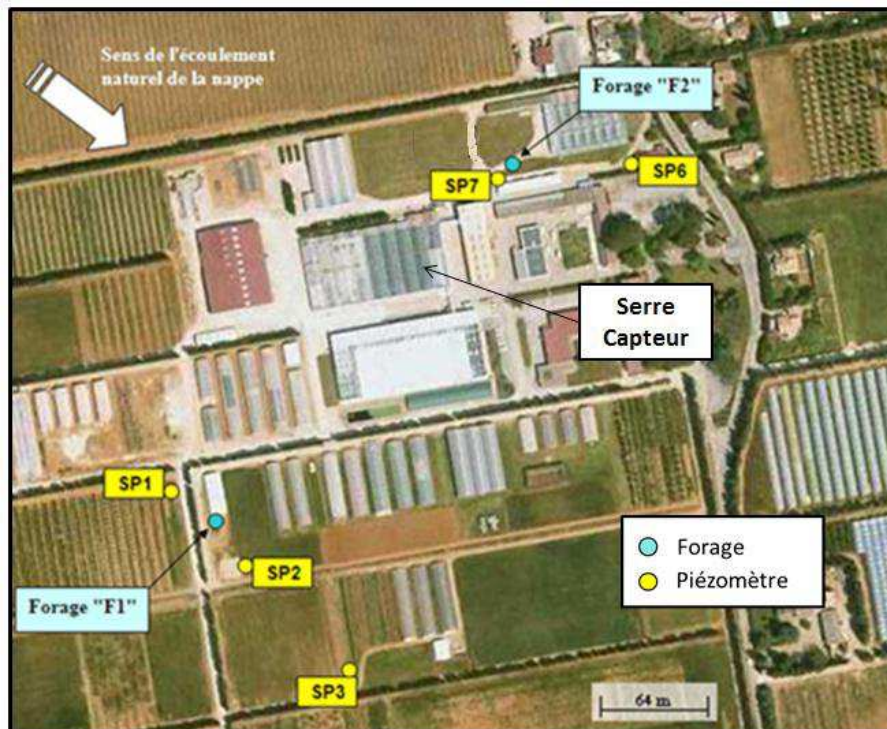


Figure 32 : Positionnement du doublet géothermique F1 et F2 et des piézomètres de suivi, SP1, SP2, SP3, SP6 et SP7

Les ouvrages d'exploitation ainsi que ces différents piézomètres ont été équipés d'un dispositif de mesure de la température multiniveaux (sondes Pt 100 reliées à une centrale d'acquisition, voir annexe 2) afin de caractériser finement le comportement thermique de la nappe sur l'ensemble de la tranche d'eau et permettre d'apprécier le fonctionnement du dispositif de stockage. Des sondes de niveau viennent compléter le dispositif. L'acquisition de données en continu (pas de mesure = 15 min) a débuté le 22 décembre 2009.

3. Contexte hydrogéologique

3.1 Cadre régional

Le site d'étude se trouve dans le sud du département du Gard, à environ 4 km à l'ouest de Bellegarde. La formation aquifère concernée par le projet de stockage est contenue dans la formation des Costières de Nîmes, qui constitue l'une des trois nappes souterraines du sud du département. Cette formation est limitée dans sa partie nord par la nappe de la Vistrenque et dans sa partie sud par la nappe de la Camargue (Figure 33).

L'aquifère est constitué de cailloutis d'origine fluviale d'âge villafranchiens (fin tertiaire - début quaternaire) et constitue un réservoir d'une puissance de l'ordre de 5 à 25 mètres. Cette formation grossière repose sur des sables argileux attribués à l'Astien, qui surmontent eux-mêmes une série très épaisse d'argiles et de marnes du Pliocène inférieur, qui constituent le substratum imperméable. Il s'agit globalement d'une nappe productive et facilement accessible du fait de sa faible profondeur. Ces caractéristiques hydrauliques particulièrement intéressantes permettent l'exploitation de la ressource pour des usages multiples (irrigation, industrie, forages privés), y compris pour l'alimentation en eau potable. L'alimentation de ces nappes est réalisée essentiellement par l'impluvium local, compte tenu de la forte capacité d'infiltration des cailloutis.

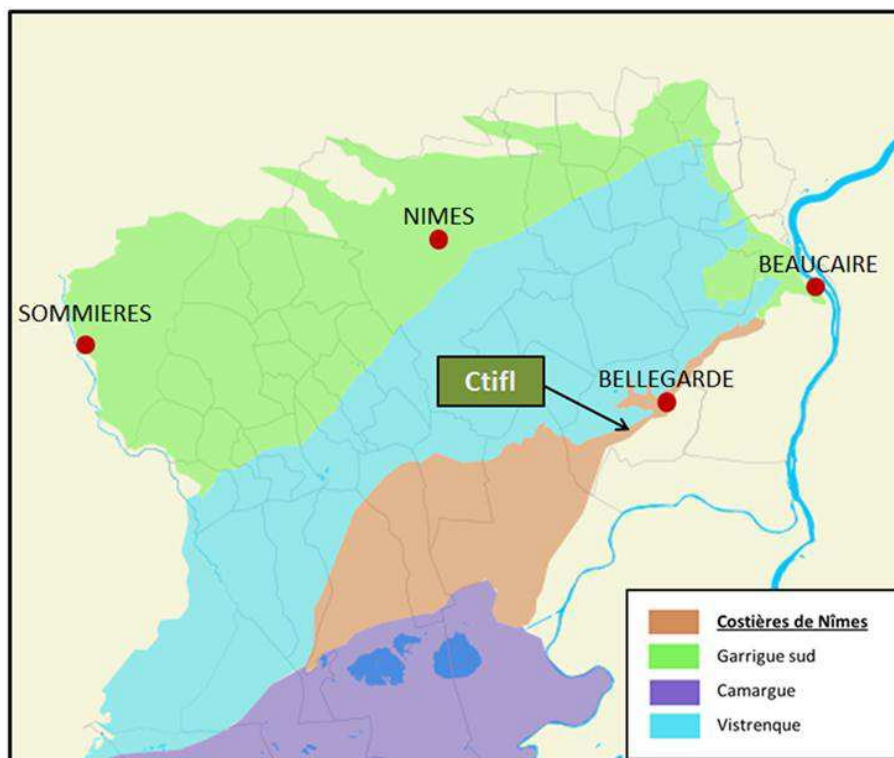


Figure 33 : Illustration des nappes au sud du Gard (source : <http://accs.ens-lyon.fr/SVG/nappessudgard>)

3.2 Cadre local

3.2.1 Reconnaissance géologique du site

Des campagnes de prospection et de reconnaissance géologique menées en 2007 au droit du site ont permis de préciser plus finement la géométrie du réservoir aquifère. Les travaux soulignent une relative hétérogénéité des caractéristiques du sous-sol, comme le témoigne les variations latérales de faciès observés sur la planche de corrélation géologique (Annexe 3).

4. Caractérisation des formations hôtes sédimentaires

4.1 Analyses granulométriques

Les échantillons de la formation ont été collectés au cours des opérations de foration qui se sont déroulées lors de la mise en place du dispositif (fin 2008). Les prélèvements ont été effectués au niveau du piézomètre SP3 à différentes profondeurs, depuis la zone superficielle de nappe (6-7m), jusqu'à la partie inférieure de l'aquifère, proche du substratum argileux (14-15m). L'échantillonnage de la partie médiane de la zone saturée (10-11m) a également été effectué et sera considéré, pour la suite des analyses, comme représentatif de la formation sédimentaire globale. La coupe géologique des terrains traversés figure en annexe 3. Les courbes de distribution granulométrique (passants cumulés) obtenues pour les différents points de prélèvements sont présentées dans la figure 35 ci-dessous.

Les résultats obtenus indiquent une évolution décroissante de la granulométrie depuis la tranche superficielle de la nappe jusqu'au niveau le plus profond :

- la formation superficielle (profondeur : 6-7m) comprend en effet une forte proportion d'éléments grossiers, son diamètre médian ou d_{50} (diamètre en dessous duquel 50% de la masse totale de sédiment est passée) est d'environ 15000 μm , soit 15 mm. La proportion de particules de diamètre inférieur à 100 μm est voisine de 2,5 %.
- les niveaux plus profonds (de profondeur comprise entre 14 et 15 m) présentent un rapport plus élevé d'éléments moyens à fins, avec un d_{50} d'environ 250 μm et un pourcentage de particules de diamètre inférieur à 100 μm proche de 20 %.

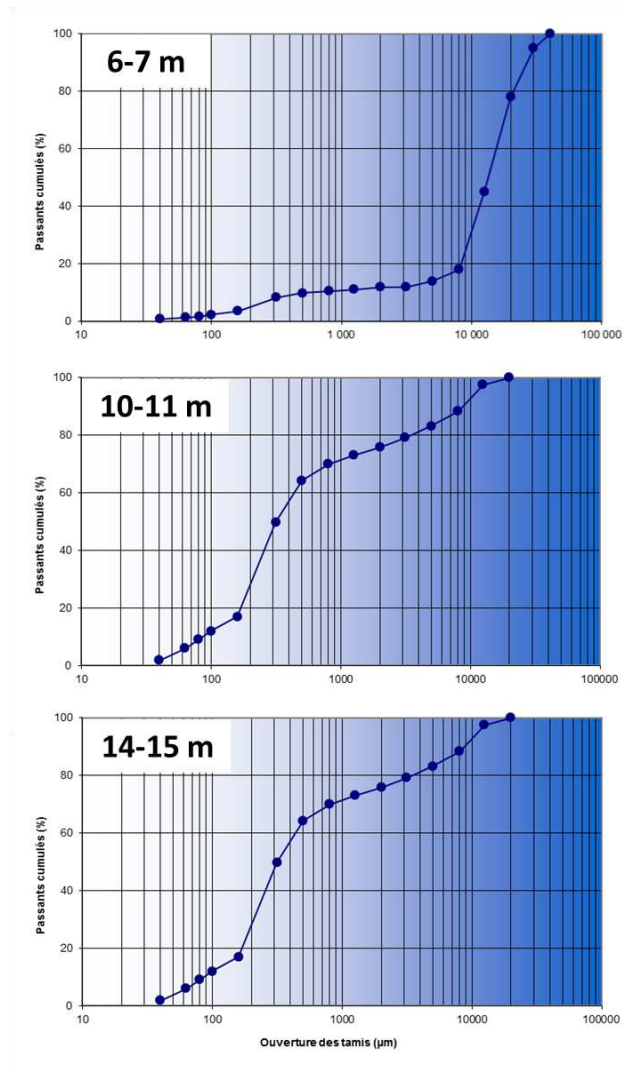


Figure 35 : Courbes de distribution granulométrique des échantillons récoltés aux différentes profondeurs

Ces résultats sont conformes aux observations visuelles de terrain accomplies au cours de l'avancement du forage qui ont servi à l'établissement de la coupe géologique. L'absence de niveau argileux intercalaire se traduit par l'existence d'une nappe libre unique.

4.2 Analyse pétrographique

D'un point de vue lithologique, le sédiment compte majoritairement 3 composantes principales :

- grès/quartzite (Figure 36) plus ou moins micacé présentant parfois une foliation
- silex composé de silice microcristalline et silice fibreuse plus ou moins ferreux, dont l'origine biogénique est parfois encore visible (fantômes de spicules). (Figure 37)
- calcaire bioclastique (tests) à matrice micritique (Figure 36)

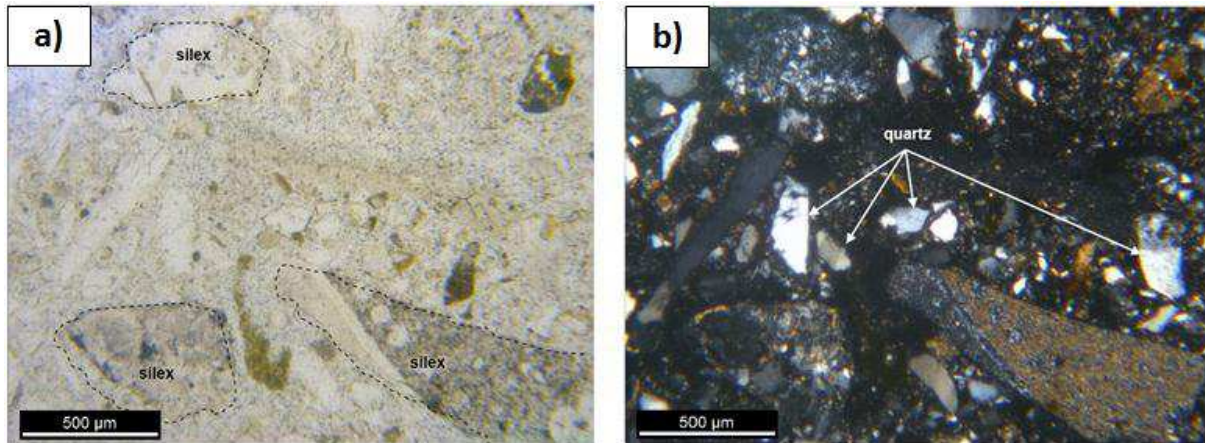


Figure 36 : Vue en lumière naturelle (a) et en lumière polarisée (b) de grains de grès/quartzite et de calcaire

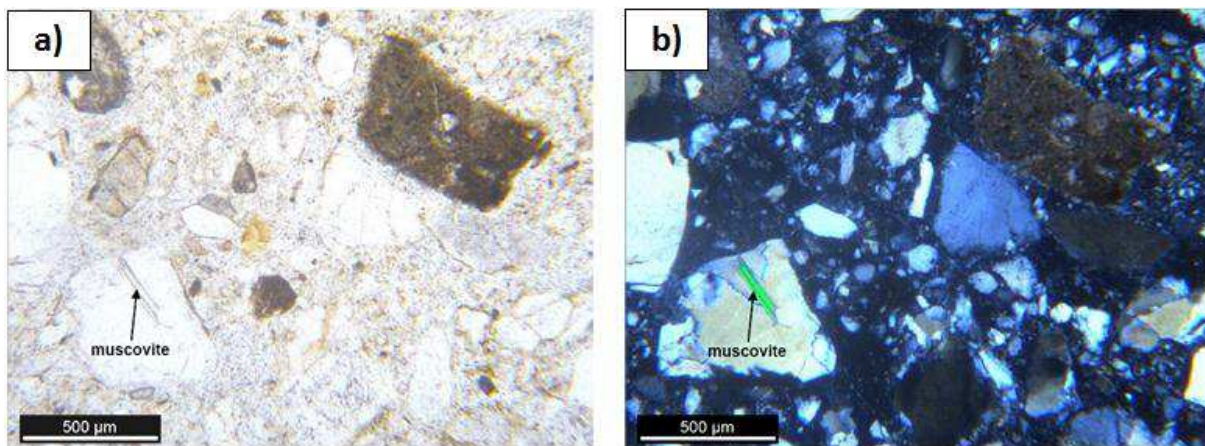


Figure 37 : Vue en lumière naturelle (a) et en lumière polarisée (b) de grains de silex (silice microcristalline)

Du point de vue minéralogique, la roche alluvionnaire est principalement composée de silice sous forme de quartz, de microquartz de recristallisation (Figure 36) dans le grès/quartzite et de silice microcristalline et silice fibreuse dans le silex (Figure 37). Quelques rares grains de quartz broyés sont également présents sous forme de particules isolées de taille millimétrique.

Outre la phase majoritaire représentée par la silice, l'échantillon comporte :

- des minéraux carbonatés de type calcite et/ou dolomite principalement sous forme de micrite dans le calcaire et parfois sous forme de rhomboèdres de dolomite ferreuse dans le silex.
- des micas blancs, de type muscovite présents dans le grès quartzite (Figure 37) ou sous forme de particules isolées (Figure 38).

- des plagioclases plus ou moins séricitisés, du microcline, et quelques minéraux opaques.

Le bilan de cette examen pétrographique montre que la roche a subi différents phénomènes d'altération avant et/ou après le transport et l'accumulation sous forme d'alluvions comme en témoigne la présence de microquartz de cristallisation ou encore la séricitisation des feldspaths alcalins (et/ou kaolinisation). D'autre part, la présence de fantômes de spicules et de calcaire biogéniques, attestent d'une origine biologique.

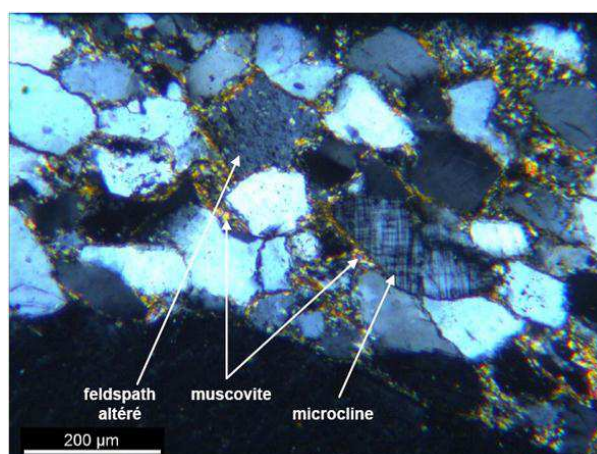


Figure 38 : Grès/quartzite en lumière polarisée

4.3 Analyses chimiques globales

Les analyses chimiques globales, multiélémentaires, ont été réalisées par ICP/AES après dissolution chimique de la matrice sédimentaire. Elles portent sur les éléments majeurs, représentés sous forme d'oxydes, ainsi que sur les éléments traces, exprimés en mg/kg sous leur forme élémentaire. Ces informations ont été complétées par une analyse du carbone et soufre total, ainsi que par la mesure de la perte au feu. L'ensemble des résultats de l'analyse globale sont consignés dans le tableau 10 ci-dessous.

Tableau 10 : Résultats de l'analyse chimique globale (majeurs et traces) de la matrice sédimentaire

Eléments majeurs et perte au feu

Element	Al ₂ O ₃	CaO	Fe ₂ O ₃	K ₂ O	MgO	MnO	SiO ₂	TiO ₂	Na ₂ O	P ₂ O ₅	C Total	S Total	PF *
Unité	%	%	%	%	%	%	%	%	%	mg/kg	%	%	%
Résultats	2.4	3.4	1.15	1.65	0.24	0.02	83.3	0.04	0.9	449	0.6	< 0.01	2.59

* PF = perte au feu (1000°C)

Eléments traces

Element	Ag	As	B	Ba	Be	Bi	Cd	Ce	Co	Cr	Cu	La	Li
Unité	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg
Résultats	< 0.2	< 20	14	104	< 2	< 10	< 2	< 10	< 5	< 10	< 5	< 20	< 10

Element	Mo	Nb	Ni	Pb	Sb	Sn	Sr	V	W	Y	Zn	Zr	Li
Unité	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg
Résultats	< 5	< 20	< 10	< 10	11	< 10	73	< 10	< 10	< 20	8	31	< 10

Cette caractérisation chimique préliminaire montre que le sédiment apparaît, sur la base des seuils de détection analytique, comme exempt de toute pollution par des éléments traces inorganiques (Pb, Cu, Cr, As,...).

De plus, aucun produit volatil n'a été détecté après chauffage à 450°C (< 0.05%), suggérant ainsi que le sédiment ne possède qu'une fraction très limitée de matière organique, la grande majorité du carbone devant se trouver sous forme inorganique.

4.4 Analyses minéralogiques

Les principales phases minéralogiques identifiées à partir des spectres de DRX sur poudre sont par ordre d'abondance : le quartz (~70%), la calcite (~5%), ainsi qu'un cortège de minéraux présents sous forme de traces (muscovite, albite, microcline).

La phase minérale constitutive de la fraction phylliteuse est, quant à elle, représentée par l'illite.

4.5 Mesure de la capacité d'échange cationique (CEC)

Les résultats de la mesure de la CEC et du dosage des cations libérés en solution (Ca, Mg, K, Na) sont reportés dans le tableau 1.

Tableau 11 : Analyse de la capacité d'échange cationique et mesure des cations échangeables

Détermination	CEC	Ca	K	Mg	Na
Unité	meq/100g	meq/100g	meq/100g	meq/100g	meq/100g
Résultats	1.18	2.4	< LQ	< LQ	< LQ

Les résultats indiquent que la somme des cations extraits diffère légèrement de la valeur de la CEC mesurée. L'hypothèse la plus probable pour expliquer cet écart a pour origine la dissolution de carbonates présents dans la fraction argileuse au cours de l'analyse. Des investigations supplémentaires s'avèreraient nécessaires pour confirmer cette hypothèse (test de lixiviation en parallèle des mesures de CEC), mais nous considérerons néanmoins par la suite que la valeur issue de la mesure de la cobaltihexamine absorbée constitue la valeur de référence.

4.6 Reconstitution quantitative de l'assemblage minéralogique

Sur la base des analyses réalisées précédemment, une reconstitution quantitative probable et cohérente de l'assemblage minéralogique du site a été effectuée (Figure 39). Les masses d'éléments mesurées par analyse chimiques élémentaires sont ainsi réparties de la façon suivante :

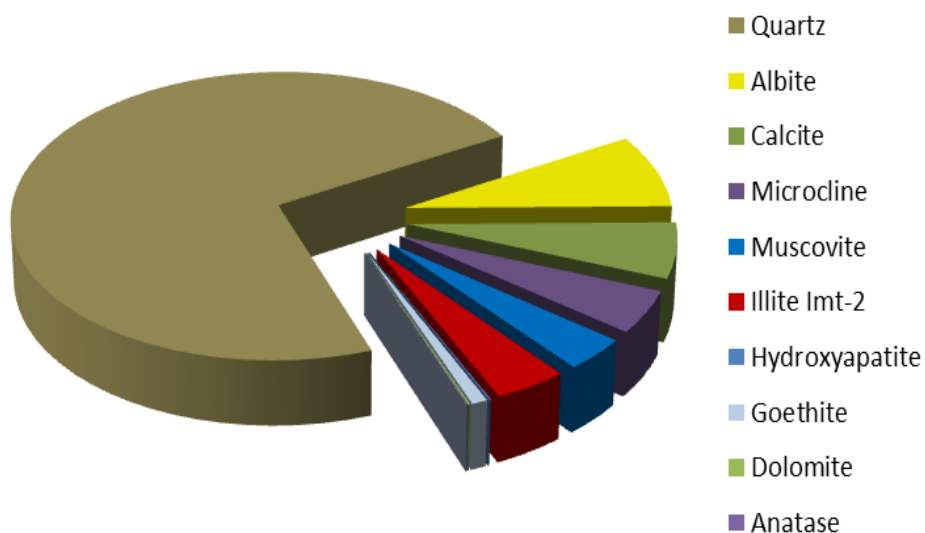
- **Si** : majoritairement sous forme de quartz, le restant étant inclus dans les aluminosilicates (feldspaths et phyllosilicates)
- **Ca** : principalement sous forme de calcite et accessoirement sous forme d'illite et dolomite
- **Al** : sous forme de feldspaths (alcalins et potassiques) et de phyllosilicates
- **K, Na** : essentiellement sous forme de feldspaths et inclus en trace dans des minéraux accessoires (Micas, illite)
- **Mg** : inclus dans la structure minéral de d'illite et accessoirement dans celle de la dolomite, même si celle-ci n'a pas été identifiée par DRX.
- **Fe** : hormis l'illite, aucun minéral source potentiel de Fe n'a été identifié. Dans le but de ne pas surestimer la proportion d'illite dans l'assemblage minéralogique, il a été choisi arbitrairement d'inclure de la goethite au modèle.
- **P, Ti, Mn, Ba, Sr** : aucune information qualitative n'a pu être obtenue en ce qui concerne les formes minéralogiques incluant ces éléments. Il a donc été convenu, à partir de la base de données thermodynamique, de sélectionner l'hydroxyapatite, l'anatase, la rhodochrosite, la barite ainsi que la strontianite comme sources potentielles de ces éléments (P, Ti, Mn, Ba et Sr respectivement).

Les résultats obtenus, et en particulier la forte proportion de quartz, coïncident avec les descriptions lithologiques des formations sédimentaires hébergeant la nappe, composées de formations gravelo-sableuse à sablo-graveleuse avec des niveaux plus ou moins argileux.

Minéraux	% massique	mol / kgw *	% mol
Quartz	70.75	26.91	89.58%
Albite	8.00	0.70	2.32%
Calcite	6.00	1.37	4.56%
Microcline	4.59	0.38	1.25%
Muscovite	3.53	0.20	0.67%
Illite lmt-2	4.00	0.23	0.76%
Hydroxyapatite	0.10	0.00	0.02%
Goethite	0.87	0.22	0.74%
Dolomite	0.10	0.01	0.04%
Anatase	0.04	0.01	0.04%
Barite	0.02	0.00	0.01%
Rhodocrosite	0.01	0.00	0.003%
Strontiannite	0.00	0.00	0.0003%

* évalué à partir d'une valeur de porosité de 30 %

a) Données numériques selon les unités considérées



b) Traduction visuelle sous forme de diagramme circulaire (% massique)

Figure 39 : Reconstitution de l'assemblage minéralogique à partir des différentes analyses de la phase solide

5. Evolution thermique de l'aquifère

5.1 Composante naturelle : variation saisonnière

5.1.1 Mise en évidence

L'examen des chroniques de température, obtenue sur les différents points d'accès à la nappe, ont tout d'abord permis de mettre en exergue des variations saisonnières naturelles de la température de la nappe. La figure 40 illustre ce phénomène à différentes profondeurs pour l'un des piézomètres situé en dehors de la zone d'influence de l'installation géothermique, en l'occurrence le piézomètre SP3.

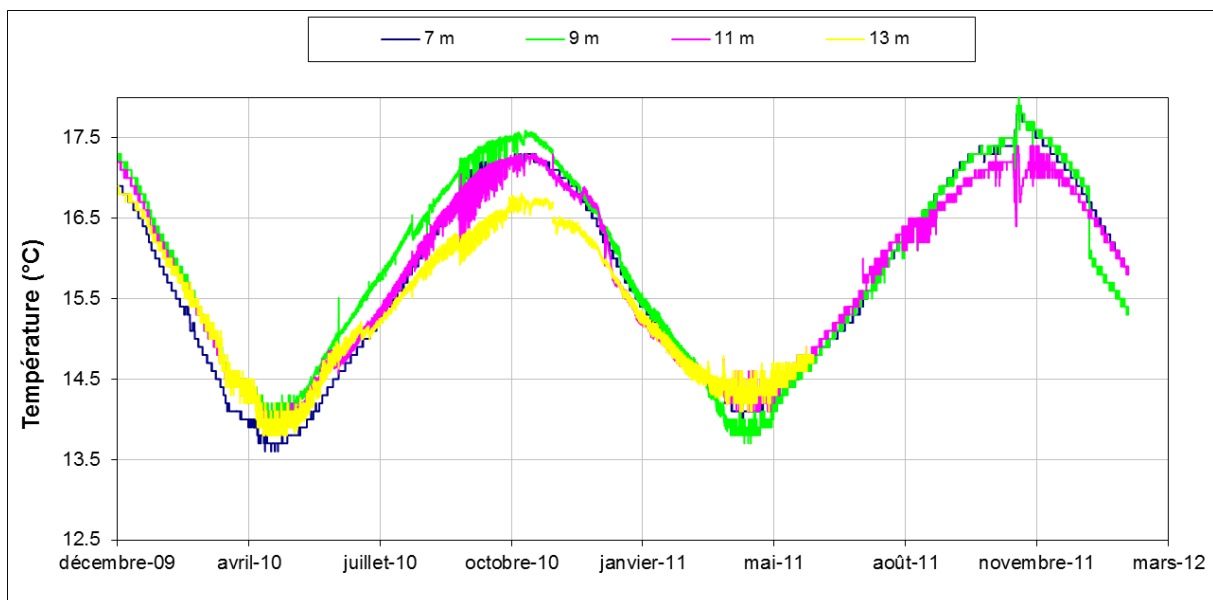


Figure 40 : Température de la nappe relevée à quatre profondeurs dans le piézomètre SP3 durant l'ensemble de la période d'investigation

L'examen de cette figure montre des variations annuelles de la température très marquées, avec une amplitude de variation maximale de 3,5 °C pour le niveau le plus superficiel (7 m de profondeur). Les températures maximales sont enregistrées dans le courant de l'automne (Octobre), et les minima au cours du printemps (Avril).

On remarque également que l'amplitude des variations décroît avec la profondeur, comme le montre la comparaison des profils de température entre 7 et 13 m de profondeur.

Ces observations sont imputables, en partie du moins, à la pénétration des ondes saisonnières depuis le compartiment de surface, avec un déphasage correspondant à l'inertie thermique des terrains traversés. Cette hypothèse sera vérifiée dans le paragraphe suivant.

5.1.2 Analyse de la relation avec la température extérieure

La figure 41 illustre la comparaison entre les oscillations des températures de surface, mesurées sur une station climatique au niveau du site (source : Ctifl), et les oscillations naturelles de la nappe au niveau de deux ouvrages (SP2 et SP3).

Hormis les variations diurnes / nocturnes des températures de surface, on remarque que les oscillations saisonnières présentent une allure comparable à celles observés dans les niveaux de nappe, avec toutefois un décalage temporel de l'ordre de 3 mois et demi et moyenne pour l'ensemble des ouvrages considérés (Tableau12).

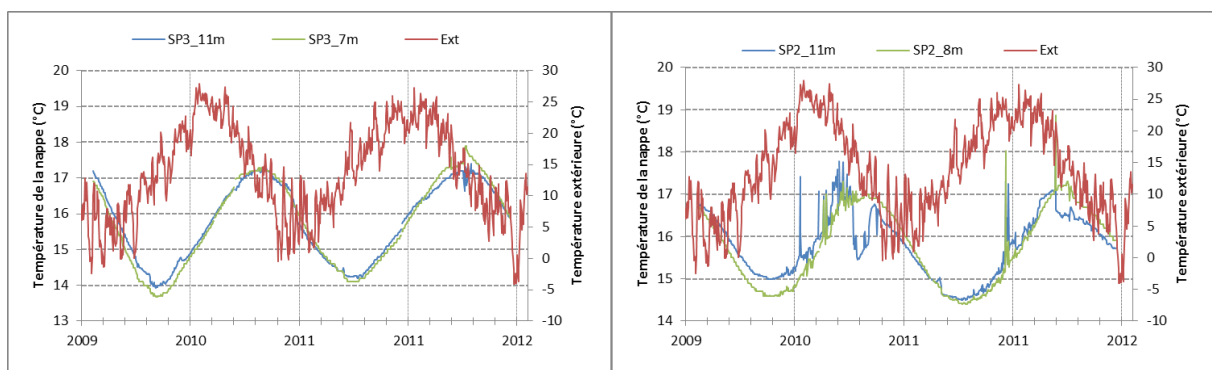


Figure 41 : Comparaison entre température de la nappe et température extérieure (points SP2 et SP3)

Tableau 12 : Amplitudes de variation annuelle de la température de la nappe et déphasages des extrema (en jours) avec ceux de la température extérieure

	SP1	SP2	SP3
Min année 1	101	111	95
Max année 1	123	78	78
Min année 2	119	112	104
Max année 2	132	89	88
Moyenne (jours)	119	98	91

La distribution annuelle des températures peut être approchée mathématiquement par la fonction sinusoïdale suivante (Taniguchi, 1993) :

$$T_{(t)} = T_m + T_i \sin(\omega t) \quad (\text{III.1})$$

Où T_t représente la température à un instant t , T_m est la température annuelle moyenne (soit $14,6^\circ\text{C}$), T_i est l'amplitude de la variation de surface (soit 12°C) et ω , la période annuelle (ou $2\pi/365$).

La figure 42 présente l'ajustement de la fonction sinusoïdale aux données expérimentales sur 2 années consécutives.

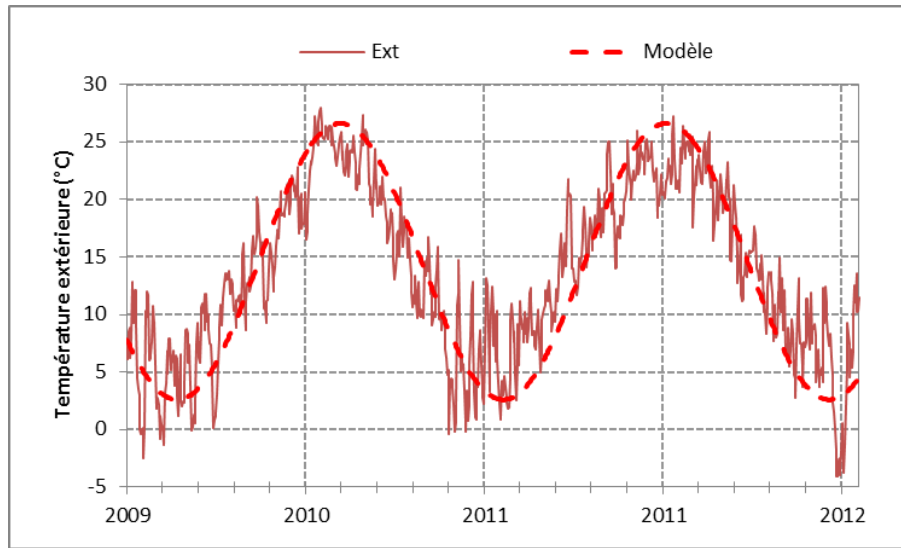


Figure 42 : Ajustement de la courbe sinusoïdale par rapport aux données expérimentales

On constate que le modèle permet de reproduire convenablement les cycles pluriannuels de variations saisonnières de températures. A cette observation s'ajoute l'effet de lissage qui fait complètement disparaître les valeurs extrêmes, correspondant principalement aux variations diurnes / nocturnes.

Afin de simuler l'influence de ces variations de surface sur le régime thermique de la nappe, et conclure quant à leur origine, un modèle de conduction pure a été utilisé. Il décrit le transfert thermique qui s'opère depuis l'interface air-sol jusqu'à une profondeur donnée. En considérant que les transferts thermiques par conduction sont prépondérants, la solution analytique recherchée correspond à celle de l'équation de chaleur en régime transitoire sans terme source :

$$\frac{\partial^2 T}{\partial z^2} = \frac{1}{a^*} \cdot \frac{\partial T}{\partial t} \quad (\text{III.2})$$

La résolution de cette équation différentielle implique la définition de conditions aux limites : on considère que le sous-sol est un milieu semi-infini homogène de température initiale T_0 uniforme (non prise en compte du gradient géothermique). A $t=0$, on impose une excitation sinusoïdale (équation III.1) à la surface du sol. La traduction mathématique de ces conditions limites est la suivante :

$$\begin{cases} T(0, t) = T_m + T_i \cdot \sin(\omega t) \\ T(\infty, t) = T_0 \end{cases}$$

Dans ce cas de figure, la solution analytique à cette équation devient:

$$T(z, t) = T_0 + T_i \cdot e^{-\sqrt{\frac{\omega}{2a^*}} \cdot z} \cdot \cos\left(\omega t - \sqrt{\frac{\omega}{2a^*}} \cdot z\right) \quad (\text{III.3})$$

Avec z =profondeur (m) par rapport au sol, et a =diffusivité thermique du milieu (m^2/s)

L'expression analytique est comparée aux valeurs de température observées dans la tranche superficielle pour les ouvrages SP2 et SP3 (Figure 43). Le meilleur ajustement a été décelé en considérant une valeur de diffusivité thermique de $a=1,3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. Celle-ci est du même ordre de grandeur que celles reportées dans la littérature pour des milieux aquifères superficiels (Palmer *et al.*, 1992).

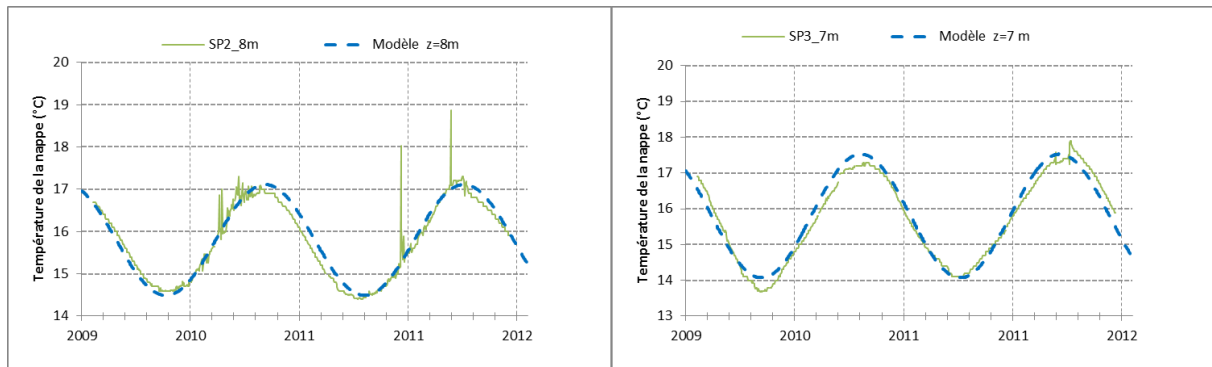


Figure 43 : Comparaison du modèle ajusté aux valeurs expérimentales en SP2 et SP3 pour la tranche d'eau superficielle

Pour les faibles profondeurs rencontrées dans la nappe, on constate que le modèle employé permet de reproduire des évolutions de température observées dans la nappe. On en déduit donc que les transferts conductifs depuis la surface expliquent de façon satisfaisante les niveaux de température rencontrés à ces niveaux. A noter tout de même que la superposition de lu modèle théorique aux courbes expérimentales a nécessité un décalage d'environ 25 jours par rapport au t_0 imposé au modèle pour la température extérieure.

Les résultats obtenus pour des niveaux plus profonds sont illustrés en figure 44.

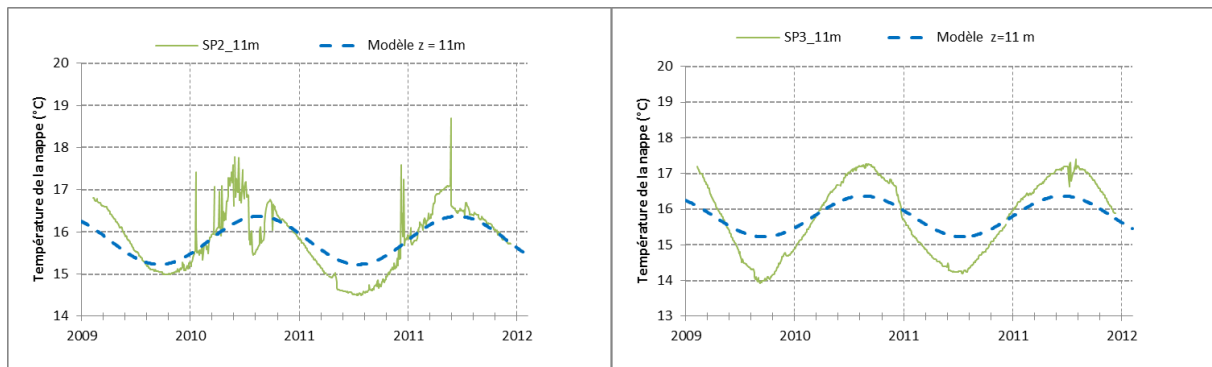


Figure 44 : Comparaison du modèle ajusté aux valeurs expérimentales en SP2 et SP3 pour des niveaux plus profond

Dans ce cas de figure et pour les mêmes paramètres thermiques, on constate que le modèle sous-estime légèrement l'ordre de grandeur des oscillations thermiques de la nappe. Un ajustement est toutefois possible en augmentant la valeur du paramètre de la diffusivité thermique à $2,4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. Ce phénomène est probablement lié à la présence de phénomène convectif (horizontal ou vertical).

En conclusion, il a été démontré que les variations de température naturelles enregistrées au niveau de la nappe s'expliquent principalement par les transferts conductifs depuis la surface. Pour les niveaux plus profonds de la nappe, la composante convective ne semble toutefois pas être négligeable.

5.2 Incidence de l'installation géothermique

5.2.1 Mode de fonctionnement de l'installation

Depuis la mise en service de l'installation en 2009, le dispositif a globalement fonctionné en mode chauffage durant la période hivernale (d'octobre à avril) et en mode climatisation en été (avril à fin septembre). Le régime de fonctionnement a été adapté selon les besoins de la serre (stade de croissance des plantes, etc), eux-mêmes fonction des températures journalières. Compte tenu des objectifs de l'étude, la présentation et l'interprétation des données thermiques relatives à la période de chauffe ne seront pas abordées.

Comme précisé dans le paragraphe 2.1.4, l'aquifère n'est pas sollicité en continu pour rafraîchir la serre. Le dispositif fonctionne par cycle unitaire d'injection généralement de

courte durée (1 à 2h), parfois réitéré plusieurs fois au sein d'une même journée, comme en témoigne les niveaux piézométriques relevés sur le forage d'injection (Figure 45).

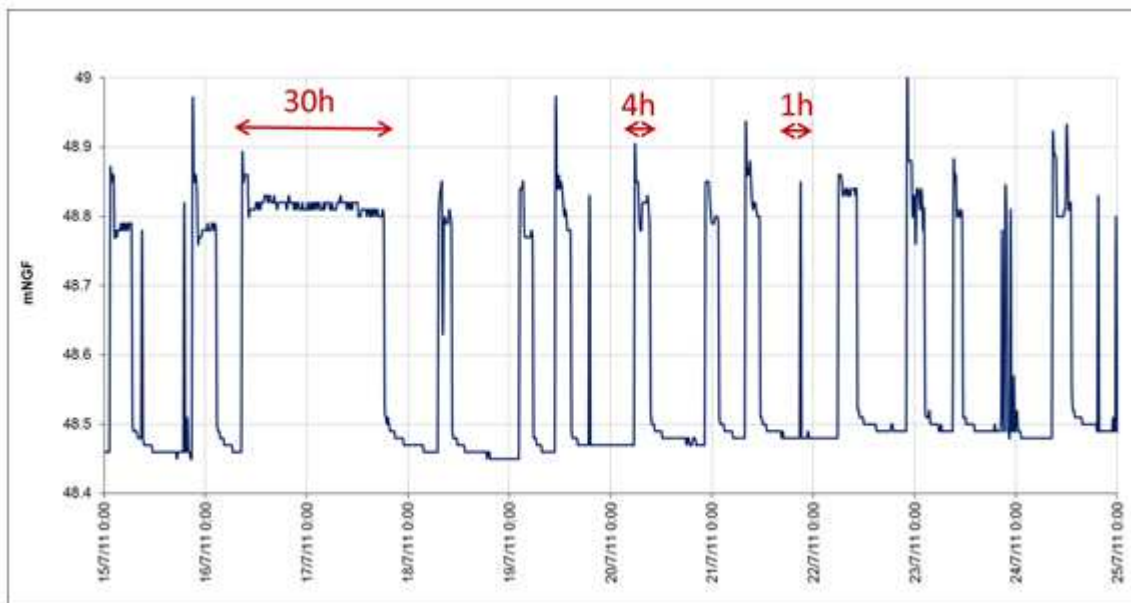


Figure 45 : Piézométrie au puits chaud mettant en évidence le fonctionnement du dispositif en mode climatisation au cours de l'été 2011

5.2.2 Suivi des températures au niveau de la nappe

5.2.2.1 Aperçu général

L'évolution générale des températures au niveau de la nappe dans chacun des piézomètres positionnés coté chaud est illustré en figure 46. On remarque tout d'abord que les fortes oscillations thermiques observées dans le puits chaud durant les périodes estivales de 2010 et 2011 ne se répercutent qu'au niveau du piézomètre situé en aval hydraulique immédiat (26 m). Les piézomètres situés en amont (SP1) et en aval hydraulique lointain (110 m) n'enregistrent pas de variations sensiblement significatives, compte tenu de la précision de mesure (voisine de 0,1 °C). D'après l'allure générale de la chronique du point SP2, on remarque que les impacts thermiques se greffent aux variations saisonnières existantes. Dès que les cycles d'injection d'eau chaude cessent (fin de période estivale), le régime thermique de la nappe reprend son allure naturelle.

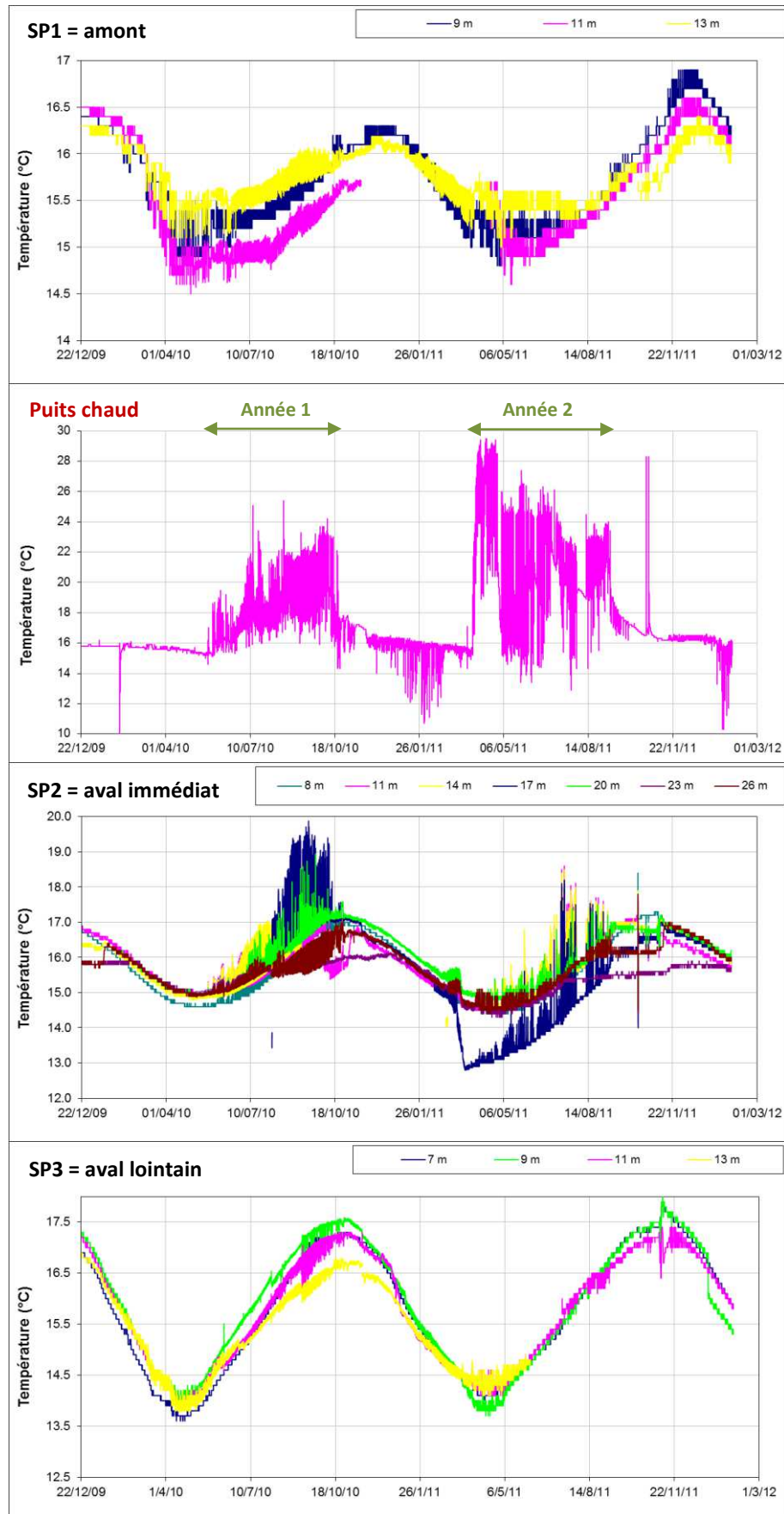


Figure 46 : Température de la nappe en amont (SP1) et en aval du point chaud (SP2 et SP3) de 2009 à 2012

5.2.2.2 Etude à l'échelle d'un épisode de réinjection

On s'intéresse dans ce paragraphe à l'incidence de cycles unitaires d'injection d'eau chaude sur la température relevée au niveau du piézomètre SP2. Durant cette période de 34 heures environ, 2 épisodes d'injection se sont produits dans le puits chaud. Le premier épisode correspond à un cycle d'injection court (~ 5h à une température d'injection d'environ 22°C en moyenne), tandis que le cycle suivant est de plus longue durée (plus de 10h d'injection à une température moyenne de 21°C). La figure 47 illustre le passage des bulles chaudes successives quelques heures seulement après le début de l'injection.

Dans les deux cas de figure, on remarque que la température de la nappe augmente progressivement, puis revient, au bout de quelques heures, à sa valeur initiale. Cette observation est représentative du comportement de la nappe au fil des différents cycles d'injection unitaire. En d'autres termes, aucun effet cumulatif lié aux cycles d'injection unitaire n'est perceptible. Cette situation exclue ainsi toute possibilité de stockage thermique.

A noter également que l'amplitude des ondes thermiques s'amortit avec la distance. De plus, cette amplitude est variable suivant la profondeur. Ainsi, les niveaux situés à 14 et 17 m de profondeur réagissent plus fortement au passage de l'eau chaude, en comparaison avec le niveau le plus superficiel (8 m). Les niveaux les plus profonds (20 m et au-delà) sont, quant à eux, insensibles à la sollicitation thermique. Il a donc été mis en évidence l'existence d'une couche plus conductrice, siège d'écoulements préférentiels au sein de la nappe.

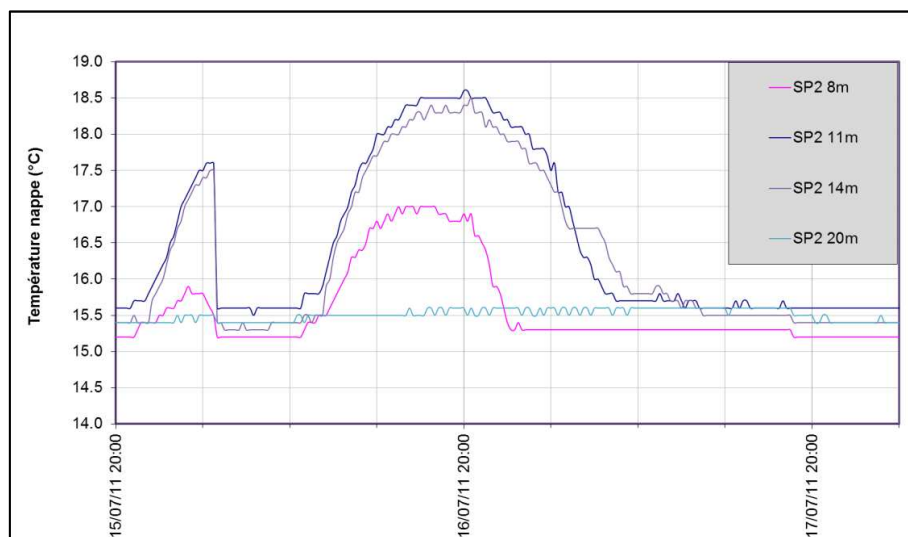


Figure 47 : Evolution de la température au piézomètre SP2 à différentes profondeurs du 15/07 au 17/07/2011 en réponse à 2 cycles d'injection d'eau chaude.

6. Evolution de la chimie des eaux

6.1 Campagnes d'échantillonnages

Les différentes campagnes de prélèvements, effectuées dans le cadre du programme expérimental opéré sur site, se déclinent en différentes phases :

- Avant la mise en place des équipements (pompe d'exhaure et colonne de réinjection) : Une première campagne d'échantillonnage a été effectuée en 2009 afin de constituer un « état initial » du site avant mise en route de l'installation.

- Depuis la mise en route de l'installation : les investigations ont été menées sur deux cycles annuels de fonctionnement du doublet géothermique (2010 et 2011) et ont été ajustées à son régime de fonctionnement et selon les objectifs de l'étude. Les différentes interventions sur site ont ainsi été concentrées durant la période estivale de climatisation.

Les différents points d'échantillonnages ciblés par le programme de surveillance sont localisés :

- côté « puits chaud », au niveau des piézomètres de suivi implantés de part et d'autre du puits : SP1, SP2, SP3

- côté « puits froid », au niveau du piézomètre de suivi SP7 et/ou au niveau de la tête de puits de l'ouvrage F1 (mise en place d'un système de piquage).

- au niveau du local technique, en aval des échangeurs à plaques, offrant ainsi la possibilité de suivre l'évolution du fluide du circuit primaire de surface au cours de son transit à travers les échangeurs thermiques.

6.2 Résultats

6.2.1 Vérification de la cohérence des analyses

La première étape qui suit la collecte des données consiste en l'analyse de l'électroneutralité de la solution, qui permet de fournir une indication sur la cohérence de l'ensemble des données. Les solutions étant en effet électriquement neutres (la somme des charges positives est égale à la somme des charges négatives), l'écart relatif sert de critère principal pour l'évaluation de la qualité des résultats de l'analyse permettant ainsi d'écarter toute erreur

d'interprétation. On considère généralement qu'une balance électrique ionique supérieure à 5 % indique un déséquilibre important et, de ce fait, remet en cause la cohérence des données. Elle est exprimée à l'aide de la formule de balance électrique ionique $E \pm (\%)$ suivante :

$$E \pm (\%) = \left| \frac{\sum z_i [C_i^{z_i+}] - \sum z_j [A_j^{z_j-}]}{\sum z_i [C_i^{z_i+}] + \sum z_j [A_j^{z_j-}]} \right| \times 100 \quad (\text{III.4})$$

Avec, C = Cations ; A = Anions ; z_i+ et z_j- = charges positives et négatives respectivement.

Sur l'ensemble des spéciations calculées, correspondant à 35 points de mesures, aucune erreur dépassant 5 % n'a été enregistrée. Les échantillons affichent pour la plupart (~75%) d'excellents résultats avec une balance inférieure à 2%. Seule une analyse présente une erreur avoisinant les 4%, mais qui reste toutefois dans la gamme de tolérance. Ces résultats préliminaires révèlent la bonne cohérence des mesures et analyses déterminées à la fois sur le terrain et au laboratoire et permettent l'exploitation de ces résultats en toute fiabilité, notamment par inter-comparaison.

6.2.1 Calcul des indices de saturation

Le calcul des indices de saturation permet d'apprécier l'état de saturation de la solution vis-à-vis de certaines phases minérales présentes dans l'assemblage minéralogique initial (phase primaire), ou susceptibles d'apparaître dans le système (phases secondaires) via par exemple un phénomène de précipitation. Les figures 48 et 49 ci-dessous illustrent les IS des eaux prélevées vis-à-vis de quelques minéraux carbonatés (calcite, dolomite), dans le cadre des différentes campagnes de suivi menées sur site, en fonction des valeurs de pH de l'aquifère.

L'eau de la nappe apparaît ainsi légèrement sous-saturée vis-à-vis de ces minéraux carbonatés pour l'ensemble des points de prélèvements. Cet état d'équilibre est étroitement lié aux valeurs de pH mesurées (de 6,72 à 7,04), particulièrement remarquable pour le piézomètre SP3, qui affiche un état d'équilibre proche de la saturation en raison de ses valeurs de pH plus élevées que le reste des points d'échantillonnage. On peut donc considérer que les carbonates sont essentiellement sous forme de calcite, avec une faible proportion de dolomite, même si ce minéral n'a pas été détecté par les analyses DRX (LQ ~ 5 %).

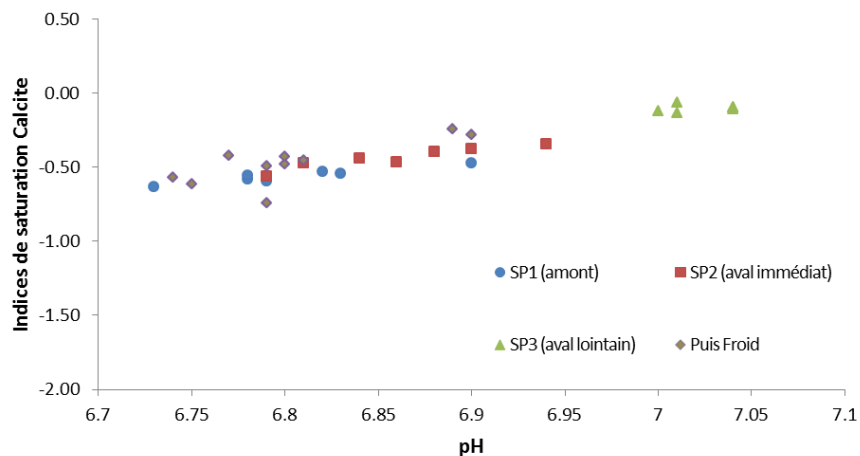


Figure 48 : Indices de saturation des eaux souterraines vis-à-vis de la calcite (CaCO_3) côté « Chaud » et côté « Froid » en fonction de la valeur du pH

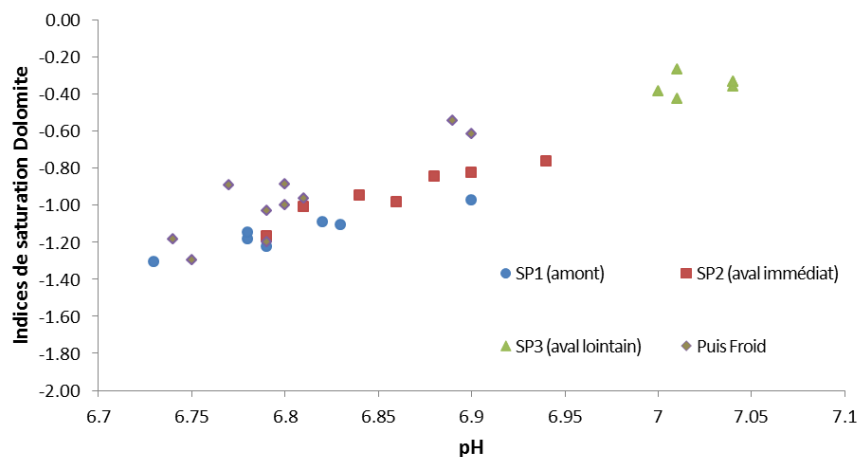


Figure 49 : Indices de saturation des eaux souterraines vis-à-vis de la dolomite ($\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$) côté « Chaud » et côté « Froid » en fonction de la valeur du pH

Ces différents calculs de spéciation nous permettent de déduire un équilibre de l'aquifère avec une phase gazeuse, comprenant 2 à 3 % de CO_2 , c'est-à-dire nettement plus riche que l'atmosphère (environ 50 à 80 fois plus concentré).

Les IS vis-à-vis de ces minéraux carbonatés en fonction des températures de prélèvement, côté « Puits chaud » (piézomètres de suivi SP1, SP2, SP3) et côté « Puits froid » (Forage F2) sont reportés sur les figures 50 et 51 ci-dessous. Pour l'ensemble des points de prélèvements, l'examen de ces IS montre que l'état d'équilibre ne varie pas avec la température des eaux

(maintien du système dans un état de sous-saturation). Ces indices sont sensiblement identiques côté « puits chaud » et côté « puits froid », excepté toutefois pour le piézomètre SP3 qui présente un état d'équilibre thermodynamique plus proche de la saturation. Cette « singularité » à l'échelle du site s'explique principalement par des valeurs de pH plus élevées que le reste des points d'accès à la nappe.

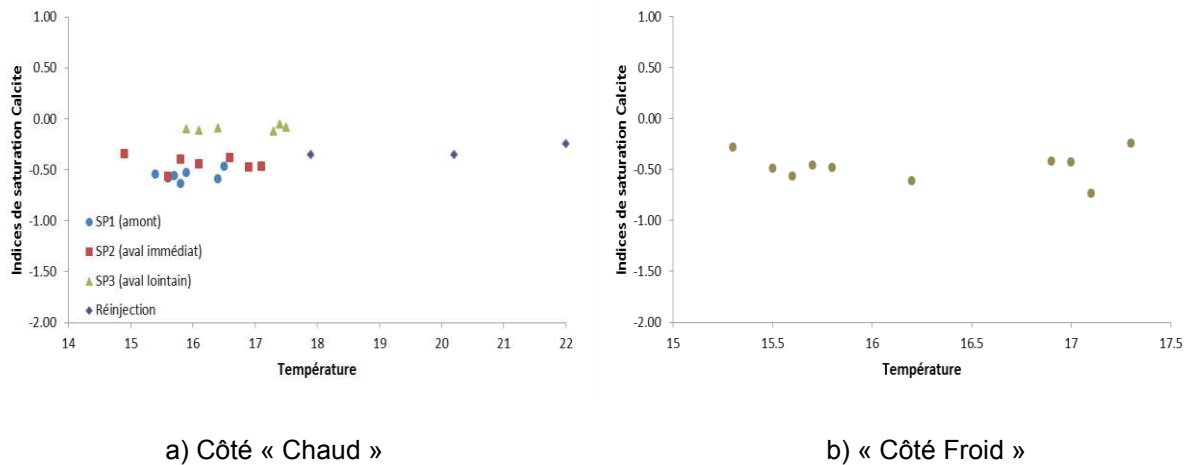


Figure 50 : Indices de saturation des eaux souterraines vis-à-vis de la calcite (CaCO_3) coté « Chaud » et coté « Froid » en fonction des températures de prélèvement

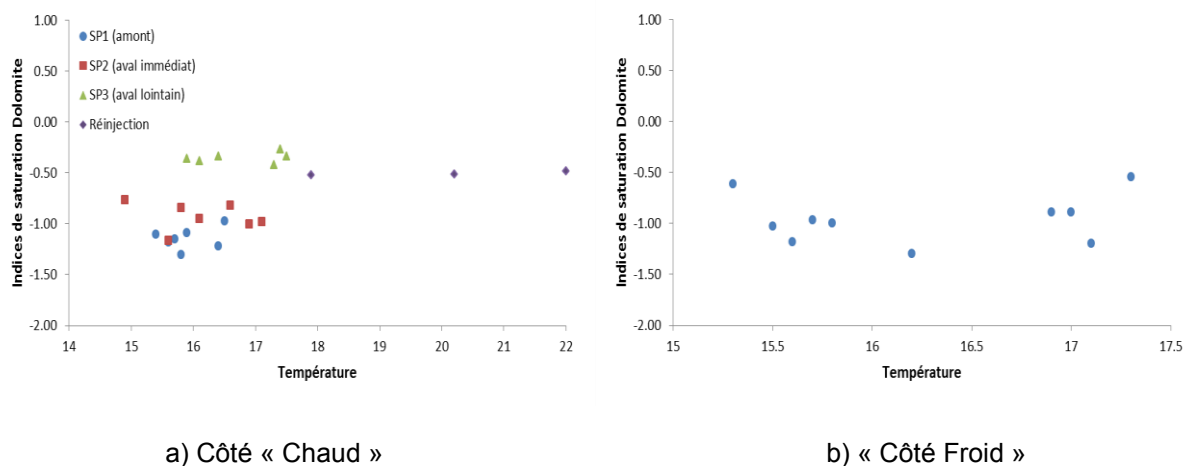


Figure 51 : Indices de saturation des eaux souterraines vis-à-vis de la dolomite ($\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$) coté « Chaud » et coté « Froid » en fonction des températures de prélèvement

En ce qui concerne les phases siliceuses, les analyses de la matrice sédimentaire ont tout d'abord permis de mettre en évidence une forte proportion de silice, conformément à la nature lithologique des formations (sables, graviers). L'état d'équilibre des eaux prélevées vis-à-vis des formes naturelles de dioxyde de silicium (SiO_2) plus ou moins cristallines, est illustré

dans la figure 52 ci-dessous en fonction de la température. Les résultats montrent tout d'abord un équilibre intermédiaire entre 2 formes cristallines le quartz et la calcédoine (cryptocristalline), et une sous-saturation importante vis-à-vis de la silice amorphe. Aucune variation significative des degrés de saturation n'est décelée dans la gamme de température rencontrée sur site.

L'eau est également légèrement sous-saturée vis-à-vis des feldspaths sodiques, représenté par l'albite (NaAlSiO_3) et saturée, voire sursaturée, vis-à-vis du pôle potassique de la famille des feldspaths, représentés par le microcline (KAlSiO_3). L'évaluation des états d'équilibre thermodynamiques vis-à-vis des phases minérales porteuses de fer (muscovite, illite) ne peut être analysée avec pertinence compte tenu du fait que la concentration de fer en solution est inférieure à la limite de quantification et ce, pour la plupart des mesures.

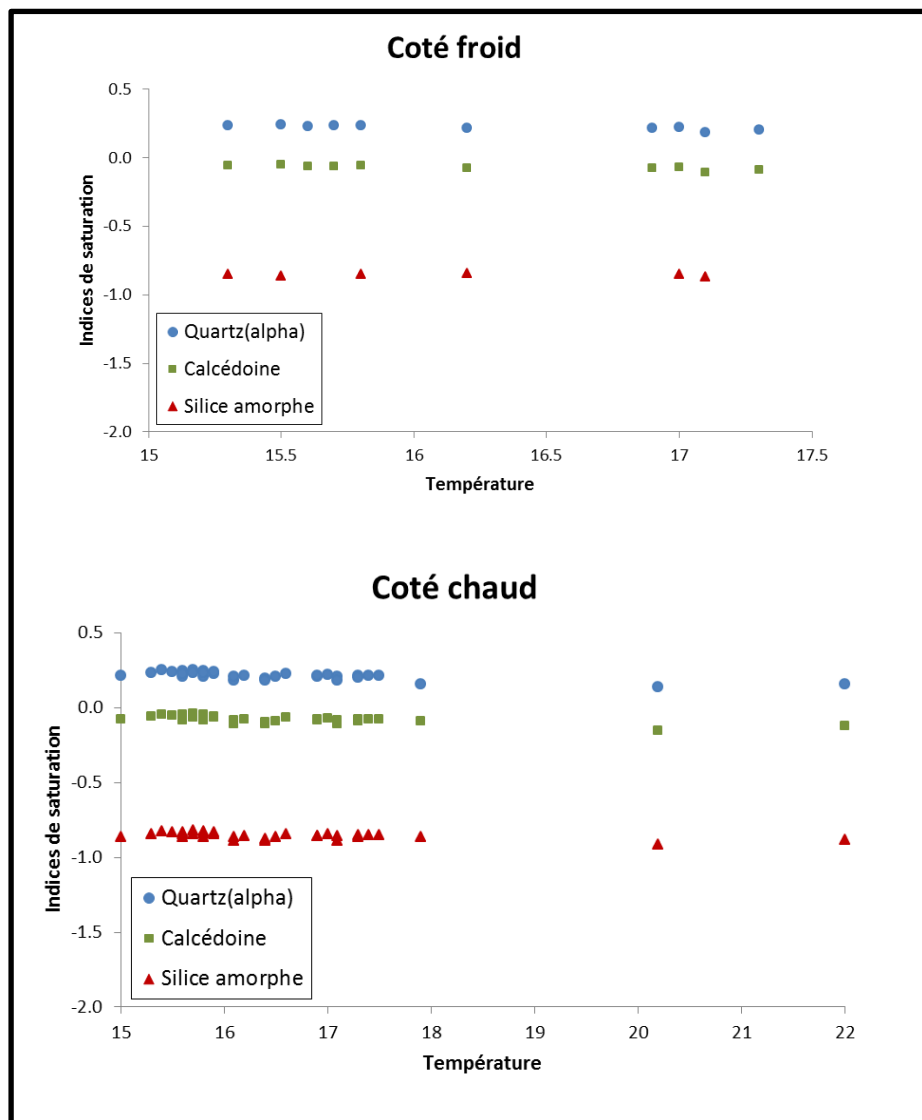


Figure 52 : Indices de saturation des eaux prélevées vis-à-vis des formes minérales siliceuses, cristallines ou amorphe.

6.1.3 Potentiel d'oxydo-réduction

A partir des calculs de spéciation calés grâce aux mesures des paramètres non conservatifs *in-situ*, il est possible d'évaluer l'état redox global du système et d'identifier certains mécanismes réactionnels responsables de la composition de la solution (par exemple les principaux couples électroactifs). L'expression du potentiel d'oxydoréduction d'un couple redox Ox/réd (relié par la demi-réaction d'oxydoréduction $\text{Ox} + n\text{e}^- \leftrightarrow \text{Red}$) est donnée par l'expression suivante, dérivé de l'équation de Nernst :

$$pe = pe^0 + \frac{1}{n} \log \frac{a_{\text{oxydant}}}{a_{\text{réducteur}}} \quad (\text{III.5})$$

Avec pe^0 : le potentiel redox à l'état standard du couple Ox/Red, renseigné dans les bases de données thermodynamiques; a_i les activités des espèces oxydante et réductrice considérées et n , le nombre d'électrons échangés lors de la demi-réaction d'oxydoréduction.

Pour le couple $\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}$, on obtient par exemple :



$$pe_{\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}} = pe_{\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}}^0 + \frac{1}{4} \log \frac{p_{\text{O}_2} \cdot a_{\text{H}^+}^4}{a_{\text{H}_2\text{O}}} \quad (\text{III.7})$$

Les couples redox identifiés à l'issue des différentes campagnes de prélèvements et d'analyses sont les suivants :

- couple $\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}$: en présence sur l'ensemble des points de prélèvements au cours de la période d'investigation.

- couple $\text{NO}_3^-/\text{NO}_2^-$: en présence sur un nombre très restreint d'échantillons d'eau (2 au total), le reste de mesures ne faisant apparaître que l'espèce nitrate, le nitrite étant en dessous de la limite de quantification.

Aucune autre spéciation redox n'a pu être mise en évidence compte tenu de l'indisponibilité d'un des membres du couple. Les résultats obtenus sont illustrés sur le diagramme de Pourbaix ci-dessous (Figure 53) sur lequel ont été reportées les valeurs de potentiel redox mesurées sur le terrain. On constate que les valeurs de potentiel redox mesurées oscillent relativement peu au cours des différentes campagnes de prélèvements ($8,5 < pe < 11,5$), montrant ainsi une relative stabilité du système au cours de la période d'investigation. Par

ailleurs, les valeurs du potentiel redox mesurées sont largement inférieures à celles du couple O_2/H_2O , majoritairement présent dans le système. Lorsque les deux termes des deux couples redox sont présents (2 points de mesures), le pe mesuré semble davantage se rapprocher du potentiel du couple NO_3^-/NO_2^- . Cependant, dans ces cas de figure, le couple de l'azote est en concentration beaucoup trop faible pour constituer un couple redox pertinent.

Ce désaccord avec la valeur mesurée à l'électrode indique que les réactions d'oxydoréduction ne se trouvent pas à l'équilibre dans le milieu et que, par conséquent, la mesure du potentiel redox ne constitue pas, en toute rigueur, une mesure probante de l'état d'oxydo-réduction du milieu. Un tel déséquilibre a largement mis en évidence depuis de longue date dans les eaux naturelles (Lindberg and Runnells, 1984 ; Michard, 2002 ; Washington et al., 2004).

Les causes de cet écart à l'équilibre sont principalement liées à des contraintes cinétiques : certaines réactions d'oxydo-réduction peuvent être en effet très lentes, d'autant plus lentes que l'un des membres du couple est en concentration faible ou lorsque que l'évolution du système est proche du potentiel d'équilibre, ce qui est particulièrement le cas du couple O_2/H_2O dans cette étude.

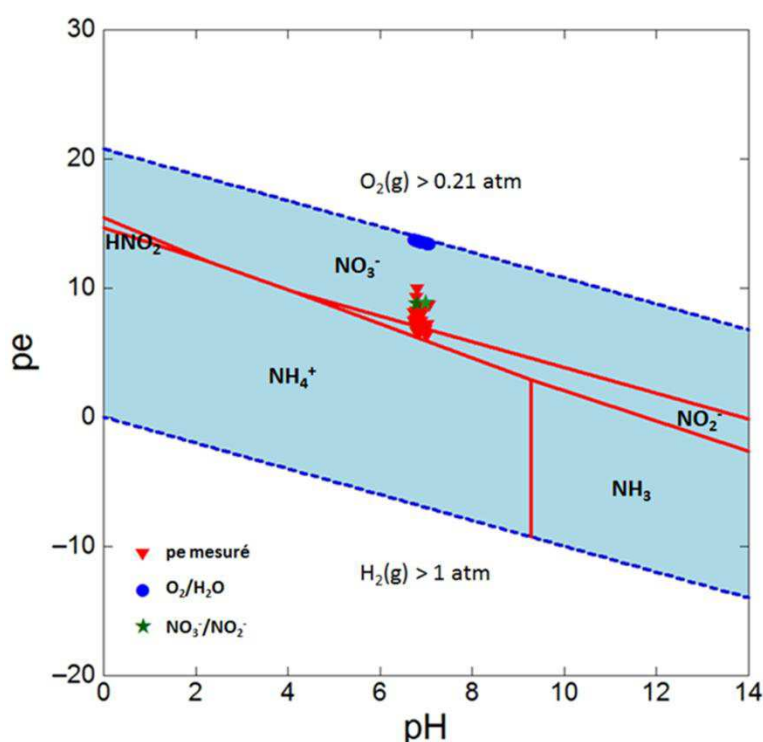


Figure 53 : Diagramme de Pourbaix simplifié, $pe=f(pH)$, des principales espèces azotées (concentration totale en espèce dissoute : $c = 10^{-3} M$; température = 25 °C ; exclusion du N_2) et représentation des points de prélèvements ainsi que des potentiels redox calculés des couples O_2/H_2O et NO_3^-/NO_2^-

Cette étude de l'état redox ne se limite pas à la mise en évidence du déséquilibre des eaux, mais permet de prédire les réactions susceptibles de se produire dans le milieu lors d'un apport d'énergie, sous forme de matière organique, laquelle consommera progressivement l'oxygène présent. L'évolution de la solution correspondra donc à une succession d'étapes catalysées, car les microorganismes, mettant en œuvre un accepteur d'électrons particulier, du plus énergétique au moins énergétique (O_2 puis NO_3^- , ...). Le métabolisme prépondérant dans l'eau du site est donc de type aérobie.

Par ailleurs, aucun effet significatif de la température n'a été mis en évidence sur l'état redox du système, dans la gamme de variation de température rencontrée sur site.

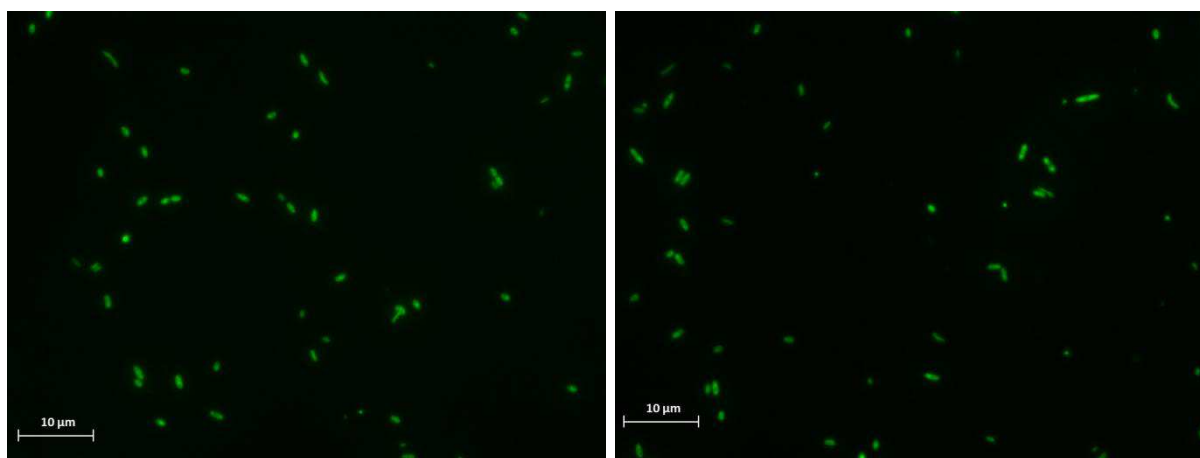
7. Evolution des paramètres microbiologiques

7.1 Suivi de biomasse bactérienne

7.1.1 Evolution saisonnière de la quantité de germes totaux

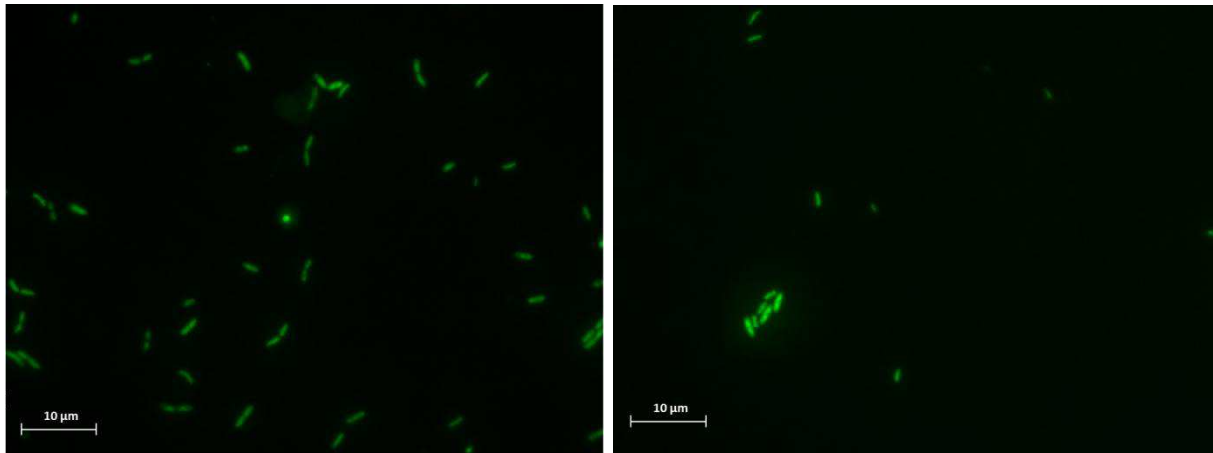
Le nombre de bactéries varie, sur la période de temps considérée et selon les ouvrages, entre 5.8×10^3 et 5.7×10^5 par mL d'eau souterraine. Cette quantité de bactéries est tout-à-fait conforme à celle trouvée dans la littérature pour les nappes d'eaux superficielles ne présentant pas de pollution (Goldscheider *et al.*, 2005 ; Grieblers et Lueders, 2009).

L'illustration ci-dessous présente, à titre indicatif, l'aspect des cellules bactériennes en microscopie à épifluorescence (Figure 54).



a) Ouvrage F2, Septembre 2010

b) Piézomètre SP1, Juillet 2010



c) Piézomètre SP2, Juin 2010

d) Piézomètre SP3, Septembre 2010

Figure 54 : Observations en microscopie en épifluorescence sur membranes de filtration des bactéries, après marquage à l'acridine orange.

Les résultats obtenus sur l'ensemble de la période d'étude et en fonction des différents points d'échantillonnage sont reportés sur la figure 55 ci-dessous. Ils montrent que le nombre de bactéries demeure relativement constant au cours du temps, avec cependant certaines périodes durant lesquelles le nombre de bactérie est nettement plus important. Il s'agit, par exemple, des dénombrements effectués au cours du mois d'Aout 2010, qui affichent des valeurs de biomasse totale supérieure à 10^5 bactéries par mL. Afin d'évaluer s'il existe une différence significative entre la quantité de biomasse présente entre la zone impactée (côté « Puits chaud ») par les rejets thermiques et la zone non impactée (côté « Puits froid »), des tests statistiques de Mann & Whitney sur les rangs des valeurs ont été mis en œuvre. Les résultats obtenus ne montrent aucune différence significative entre les deux zones d'étude, au seuil usuel de 5%.

Par ailleurs, aucune correspondance significative n'a pu être mise en évidence entre les niveaux de température relevés sur site et entre le nombre de bactéries totales.

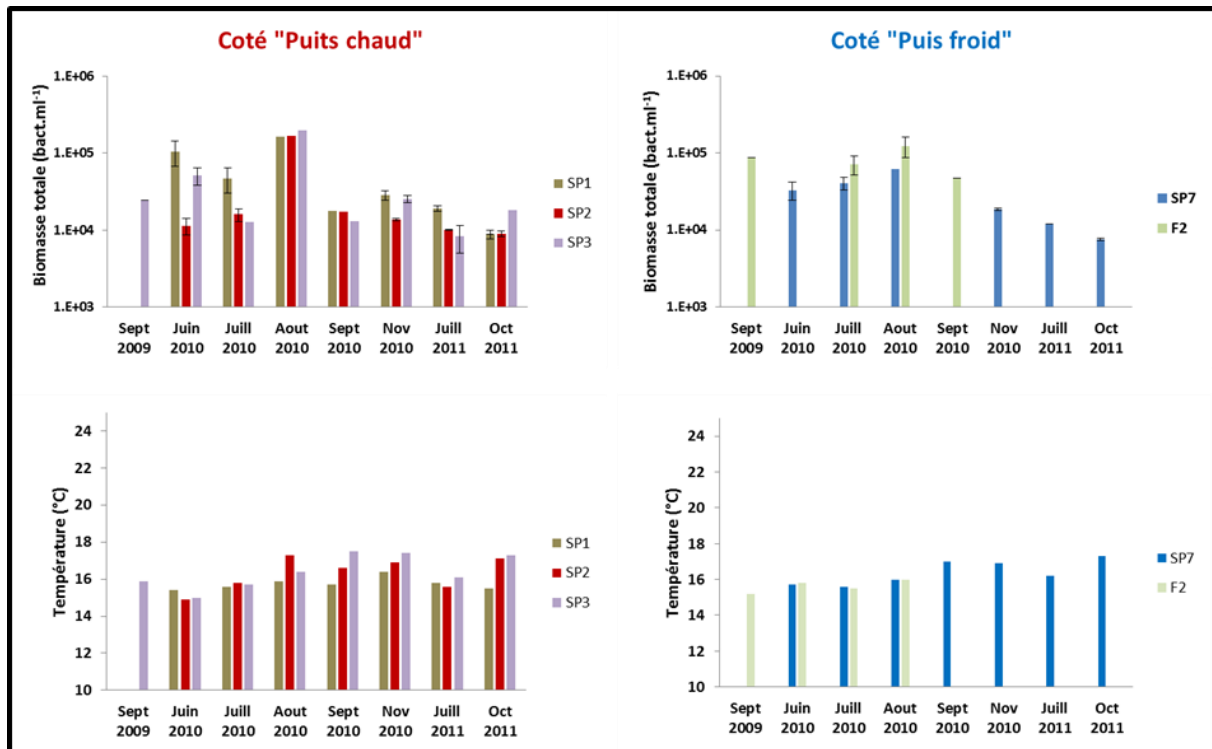


Figure 55 : Evolution du nombre total de bactéries et des températures de prélèvement correspondantes sur les différentes campagnes de prélèvement.

7.1.2 Germes d'intérêt sanitaire

L'examen des résultats au cours de deux années de suivi du fonctionnement de l'installation montre une bonne qualité microbiologique des eaux souterraines. Les résultats d'analyse se révèlent être tous négatifs, excepté pour le piézomètre SP7, qui présente ponctuellement une contamination par des coliformes, incluant *E.coli*. En conséquence, aucune conclusion ne peut pour l'heure être émise quant à l'éventuelle incidence des rejets thermiques sur le développement d'agents infectieux compte tenu du fait que les eaux de la nappe semblent présenter une qualité considérée en moyenne comme « satisfaisante » sur la base de ces critères. A noter que cette formation aquifère représente la principale ressource souterraine pour l'AEP locale.

7.2 Suivi de la diversité bactérienne

7.2.1 Distribution spatiale

La répartition spatiale des profils de diversité obtenus au niveau des différents points d'accès à la nappe, positionnés côté « puits chaud » et « puits froid », est illustrée au travers d'un

exemple de résultats acquis au cours d'une des campagnes de prélèvements effectuée juste avant la période de fonctionnement de l'installation géothermique (Juin 2010). Ces observations sont reportées sur la figure 56. Les résultats font apparaître, sur la base des seuils de détection analytique, des empreintes génétiques relativement peu complexes, marqués par la présence d'une ou deux espèces dominantes dans le milieu. A cela s'ajoute la présence ponctuelle de quelques pics qui émergent de la ligne de base, correspondant à la présence de ribotypes minoritaires.

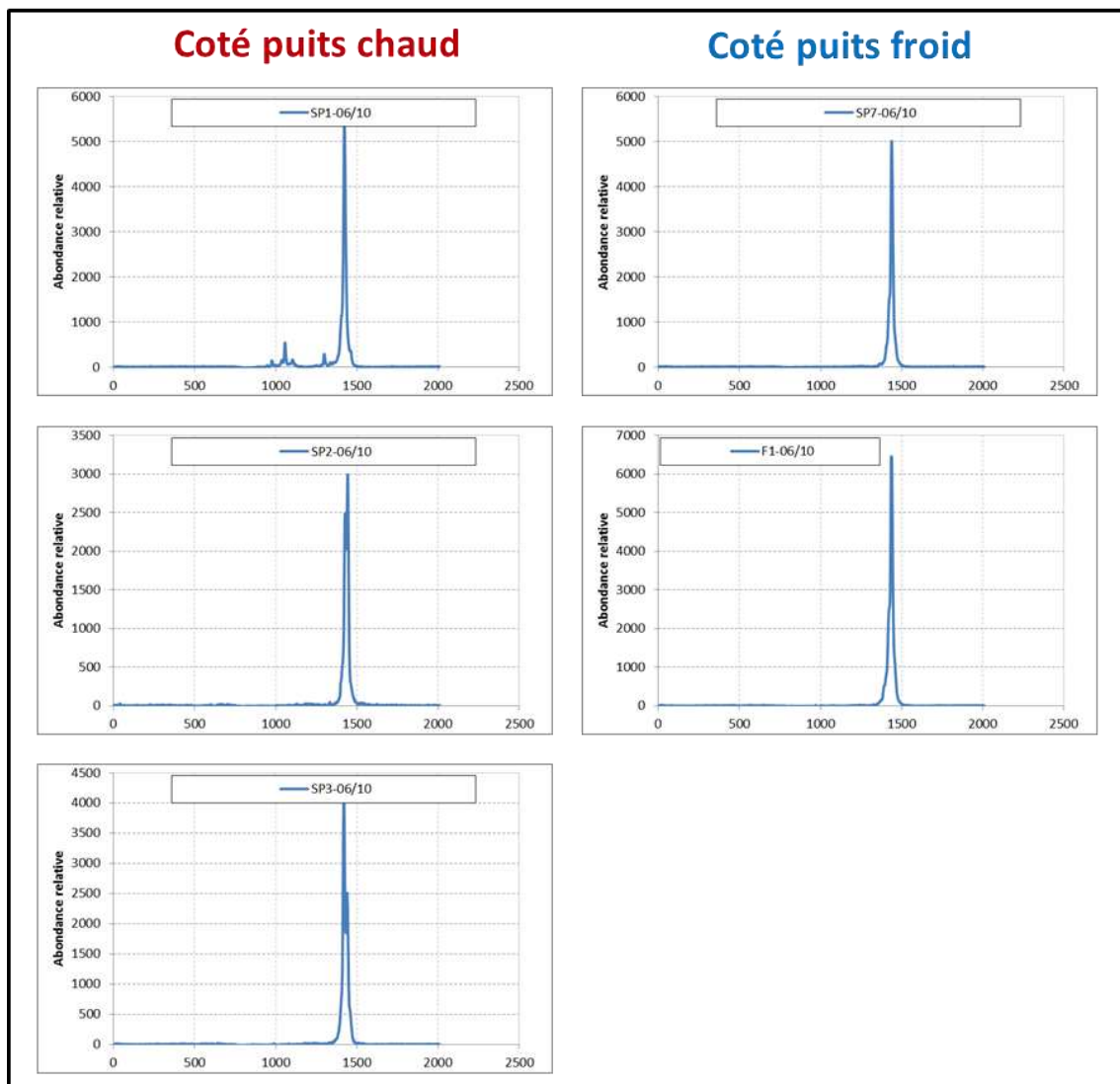


Figure 56 : Distribution des profils CE-SSCP de diversité bactérienne au niveau des différents ouvrages ciblés

L'examen de la distribution spatiale de la structure des communautés révèle une faible variabilité des profils obtenus au sein de la zone d'étude. Quelques différences sont toutefois

perceptibles mais restent minimales aux vues de l'allure générale des profils. Cette relative homogénéité des empreintes a été observée durant l'ensemble de la période couverte par les investigations sur site (2010 et 2011).

A noter toutefois que la technique CE-SSCP n'offre qu'une vision partielle de la diversité présente puisqu'on considère généralement qu'elle ne permet de mettre en évidence que les espèces numériquement majoritaires. De plus, cette technique comporte différentes étapes préliminaires (extraction d'ADN, amplification par PCR), qui introduisent chacune des biais, qui se répercutent sur les espèces minoritaires ainsi que sur le ratio entre les différentes espèces. La véritable richesse taxonomique des échantillons ne peut être approchée qu'au moyen de méthodes d'investigation plus lourdes à mettre en œuvre, qui passent par exemple par l'identification des séquences cibles (séquençage).

7.2.2 Structuration temporelle

Dans le but d'appréhender l'incidence éventuelle des rejets thermiques sur la diversité bactérienne, une série de prélèvements a été effectué sur l'ensemble des ouvrages de la zone d'étude durant la période couverte par le fonctionnement de l'installation en mode climatisation. La comparaison des profils obtenus durant l'été 2010 entre le piézomètre SP2 (temporairement impacté) et l'ouvrage SP7 (hors de la zone d'influence du panache chaud) est reportée sur la figure 57.

Les résultats obtenus montrent une certaine dynamique dans l'état d'équilibre des communautés au cours des mois successifs de prélèvements, en particulier pour le mois de Juillet 2010, pour lequel la diversité apparaît plus importante (émergence de quelques pics). Cette évolution temporelle dans la structure des communautés s'observe tant au niveau des points ponctuellement impactés que pour ceux situées hors de la zone d'influence des rejets thermiques.

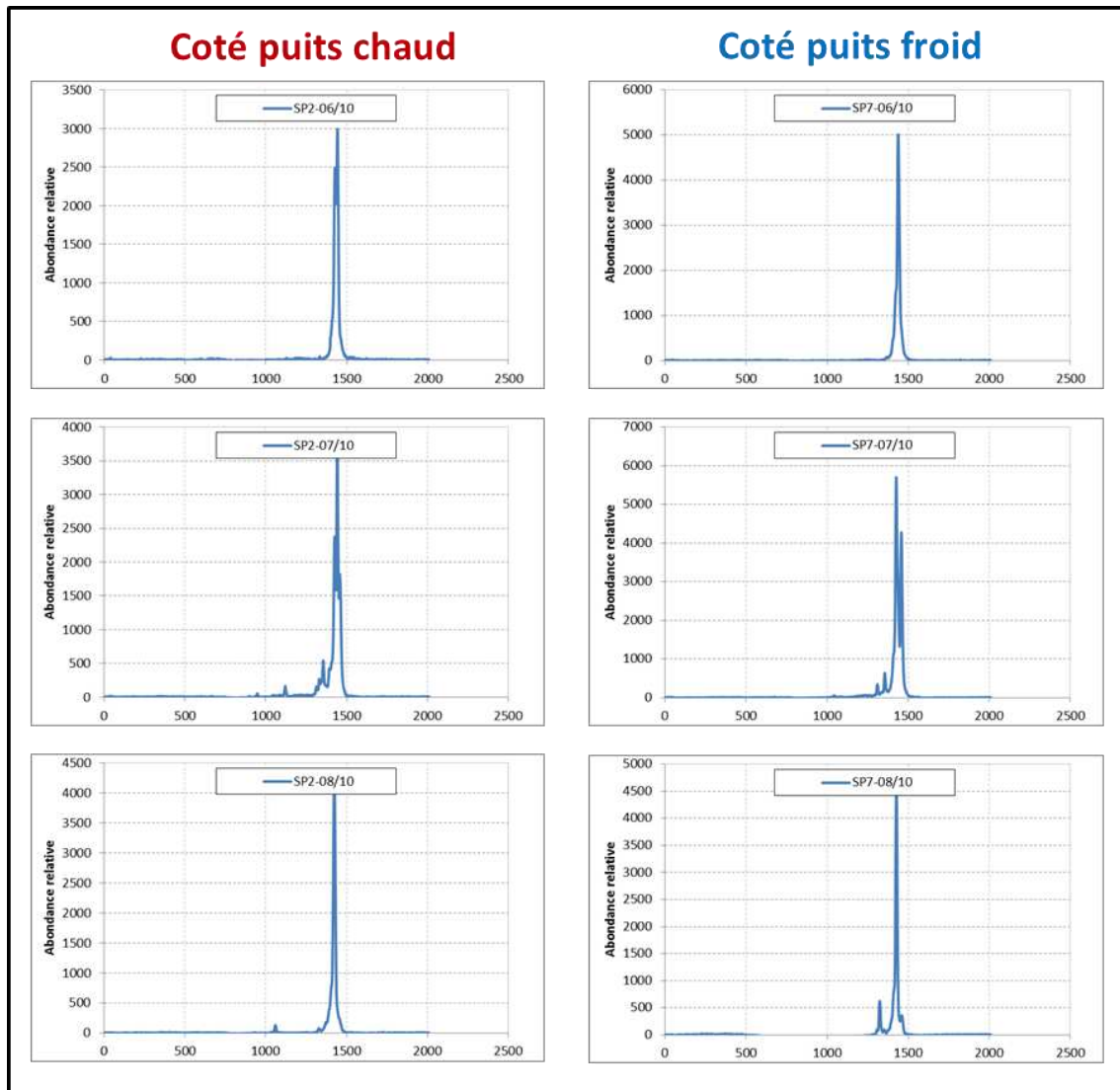


Figure 57 : Evolution des profils CE-SSCP de diversité bactérienne en fonction du temps au niveau des différents ouvrages

Ce constat, combiné à l'absence de perturbations thermiques durables dans la nappe, ne permettent pas de mettre en évidence une quelconque influence de la température sur la dynamique d'évolution de la microflore endogène du site.

Le régime thermique de la nappe est, en effet, beaucoup plus marqué par les variations saisonnières que par l'impact de l'installation géothermique. Des campagnes de prélèvements effectués en juin 2010 (proche des températures minimales enregistrées) et octobre 2010 (proche des températures maximales observées), n'ont révélées aucune influence significative de la température (données non montrées).

7.3 Mesures d'activité

7.3.1 Activité potentielle de minéralisation de substrats carbonés

L'activité potentielle de minéralisation d'un assortiment de substrats carbonés a été réalisée à l'aide de microplaques écologiques commercialisées par Biolog (se référer à la section correspondante). La figure 58 présente le suivi cinétique de la minéralisation globale des 31 substrats pour les différentes températures d'incubation. Les données expérimentales ont été ajustées au modèle empirique de Gompertz en vue d'en extraire les paramètres cinétiques (Tableau13).

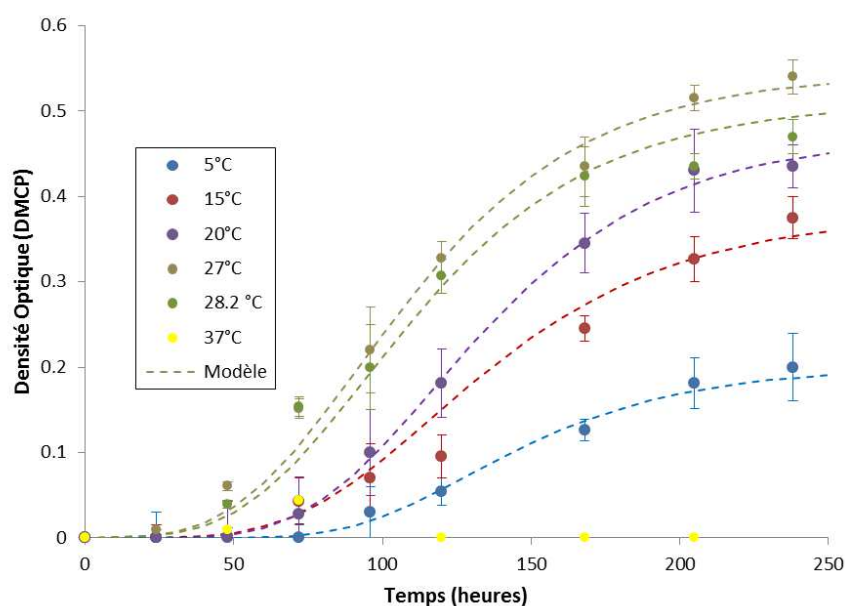


Figure 58 : Cinétique de minéralisation globale des substrats carbonés

Ce modèle simplifié est caractérisé par 3 paramètres :

- la dégradation maximale, correspondant à l'absorbance maximale en fin d'incubation (supposé être l'asymptote).
- la vitesse maximale de dégradation (i.e de développement moyen de la coloration), représenté par le paramètre cinétique μ_m de l'équation.
- le temps de latence ou λ .

Tableau 13 : Paramètres cinétiques d'ajustement du modèle. Avec A =absorbance maximale dans un puits, μ_m = vitesse maximale de développement de la coloration et λ , le temps de latence.

	5	15	21	27	28.2	30.5	37
A	0.20	0.38	0.47	0.54	0.51	0.21	0
μ_m	0.005	0.008	0.011	0.013	0.012	0.004	0
λ	89	70	73.71	50	52	66.59	0

La différence la plus marquée concerne l'absorbance maximale en fin d'incubation. On constate en effet que celle-ci augmente nettement avec la température d'incubation jusqu'à une température de 27°C, au-delà de laquelle le paramètre décroît de manière importante, pour atteindre une valeur nulle à 37°C. Cette différence traduit, dans la gamme de température comprise entre 5 et 27°C, une augmentation de la dégradation globale des substrats en réponse à une hausse de température. La dégradation est ensuite réduite au-delà de 27°C et considérée comme nulle à 37°C.

L'examen du paramètre cinétique, μ_m , montre que celui-ci présente une tendance semblable au paramètre décrit précédemment. On en conclut que la cinétique de dégradation augmente en fonction de la température jusqu'à 27°C, puis s'abaisse au-delà.

En revanche, le temps de latence λ , qui marque l'initiation de la phase de dégradation, présente une tendance inverse : sa valeur s'atténue progressivement jusqu'à 27°C puis augmente au-delà.

Les profils de minéralisations globales en fonction des différentes températures d'incubation sont présentés sur la Figure 59 ci-dessous.

Comme précédemment, on constate tout d'abord que les basses températures restreignent considérablement l'activité de minéralisation des cellules en comparaison avec les mesures effectuées aux températures proches de celle rencontrées sur site (15°C). Au-delà de 5°C, l'accroissement de la température se traduit par une hausse de l'activité de minéralisation globale des bactéries jusqu'à une valeur de température critique, voisine de 27-28°C (Figure 59), au-delà de laquelle l'activité chute brutalement jusqu'à atteindre une valeur de densité optique voisine de 0,05 à 35,5 °C, considérée comme nulle. La traduction physiologique de cette baisse sensible de l'activité de minéralisation est parfaitement décrite dans la littérature et correspond à la dénaturation progressive des protéines (enzymes), mises en jeu dans les diverses réactions, qui perdent progressivement leur activité jusqu'à atteindre la perte totale de leurs fonctions.

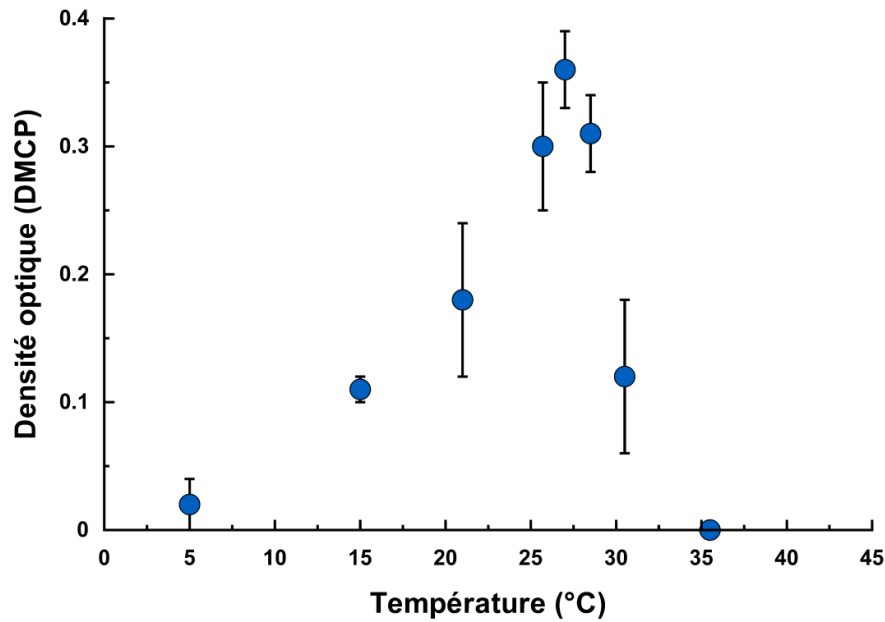


Figure 59 : Développement moyen de la coloration des puits en fonction de la température à l'issue d'une période de 120 h d'incubation

On peut estimer le facteur d'augmentation globale de l'activité en fonction de la température. Cette valeur est donnée par le Q_{10} , qui représente la relation entre la vitesse d'un processus physiologique et la température, obtenue à l'aide de la relation de Van 't Hoff:

$$Q_{10} = \left(\frac{DMCP_{T_2}}{DMCP_{T_1}} \right)^{\left(\frac{10}{T_2 - T_1} \right)} \quad (\text{III.8})$$

Où $DMCP_{T_1}$ et $DMCP_{T_2}$ représentent les mesures globales de minéralisation effectuées aux températures T_1 et T_2 respectivement.

Ainsi les valeurs de Q_{10} obtenue dans la gamme de température comprise entre 5 et 28 °C sont reportées dans le tableau 14 suivant.

Tableau 14 : Valeurs du Q_{10} en fonction de la gamme de température concernée

Gamme de T°C	Q_{10}
15-25	2.5
15-28	2.6

Ces valeurs sont tous à fait conformes à celles figurant dans la littérature : les vitesses de dégradation de matière organique augmentent, en effet, habituellement, au sein de la gamme physiologique, d'un facteur voisin de 2 par tranche de 10°C (Katterer *et al.*, 1998).

Il est toutefois nécessaire de prendre en considération les remarques suivantes pour l'interprétation des résultats:

- seule la fraction hétérotrophe dotée de capacité de métabolisation rapide est représentée dans ces mesures. La fraction bactérienne autotrophe et/ou à métabolisme lent ne participerait donc pas à la dégradation des substrats.

- un développement de la biomasse dans les puits, variable selon le degré de sélectivité du milieu considéré et des températures d'incubation, est inévitablement suspecté en raison des périodes d'incubation relativement longues. Les mesures obtenues en fin d'incubation ne reflèteraient ainsi probablement pas l'activité de la population initiale.

7.3.2 Activité déshydrogénase

L'activité déshydrogénase a été évaluée en réalisant des incubations d'eau souterraine fraîchement prélevée à différentes températures. La même expérience a été conduite en ajoutant 10 ppm d'extrait de levure à la solution. Les résultats obtenus sont reportés sur la figure 60 ci-dessous.

L'allure des courbes obtenues corroborent les résultats et interprétations précédents. Les valeurs des Q_{10} obtenues dans la gamme de température comprise entre 14 et 26 °C sont respectivement de 2,8 et 2,3 pour les mesures effectuées sur les eaux brutes et les eaux amendées en extrait de levures. Les mesures d'activité obtenues permettent, par ailleurs, de mettre clairement en évidence l'effet de la carence nutritive sur l'activité métabolique.

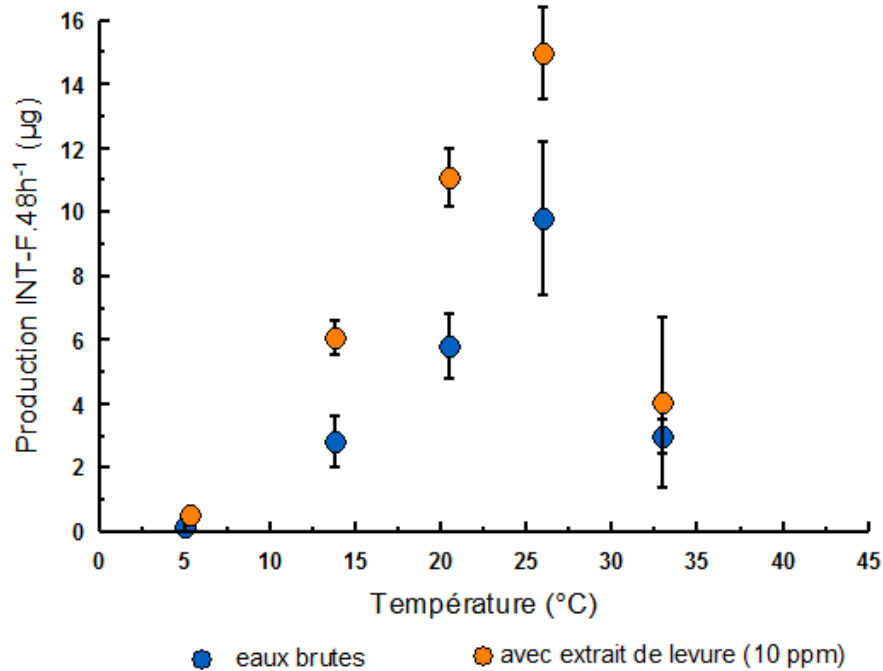


Figure 60 : Mesures d'activité en fonction de la température pour des eaux brutes et amendées en extrait de levures (10 mg/l)

7.3.3 Activité hydrolytique

La figure 61 présente les mesures d'activités hydrolytiques effectuées en laboratoire à partir des prélèvements d'eau.

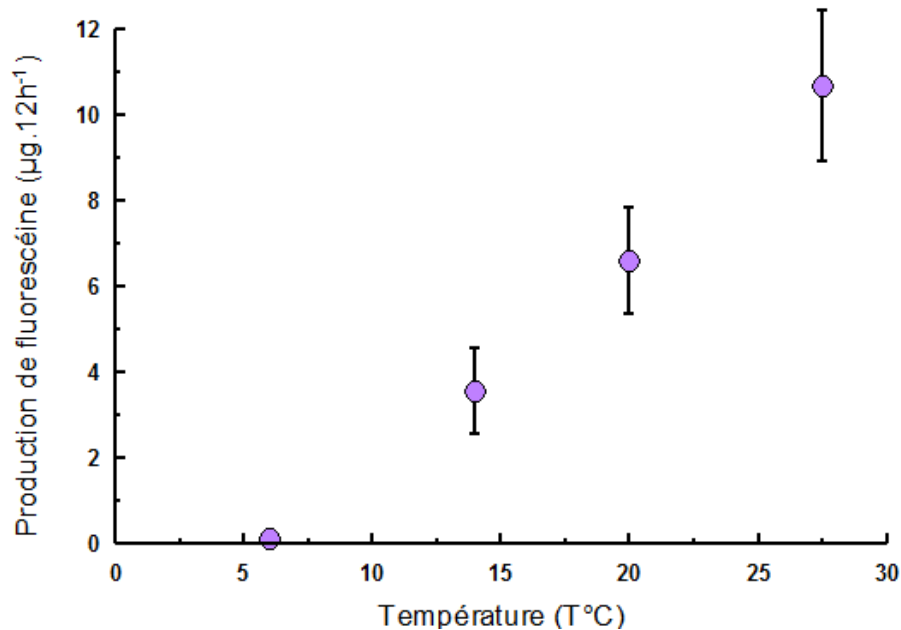


Figure 61 : Activité hydrolytique en fonction de la température

L'accroissement de la température des eaux se traduit une nouvelle fois par une stimulation de l'activité hydrolytique, comme en témoigne la valeur du Q_{10} , qui se situe aux alentours de 2,3 dans la gamme de température comprise entre 14 et 26°C.

8. Modélisation hydrogéochimique

L'évaluation de la réactivité du système face aux sollicitations thermiques est évaluée par modélisation géochimique à l'aide du code de calcul PHREEQC sur la base des analyses physico-chimiques de la nappe et de la composition de la matrice solide de l'aquifère.

8.1 Hypothèses et limites du modèle employé

L'intérêt principal de cette simulation est d'identifier les réactions chimiques susceptibles de se produire lors d'un réchauffement des eaux de la nappe et de prédire les éventuelles conséquences vis-à-vis de la qualité des eaux, ainsi qu'au niveau de l'installation en elle-même (risques de colmatage, de corrosion, etc). A cet effet, les modélisations sont effectuées en considérant les hypothèses/limitations suivantes :

- Approche à l'équilibre, c'est-à-dire que les équilibres sont supposés être instantanés
- Approche en condition statique, sans écoulement (simulation du type « batch »)
- Non prise en compte des processus d'échanges ioniques (réactions de sorption, d'échanges cationiques) et de l'influence de la matière organique.

8.2 Simulation en température sur le système chimique

8.2.1 Etat initial

Les calculs d'équilibre thermodynamiques effectués à partir de la composition initiale des eaux permettent d'en déduire l'état d'équilibre des eaux vis-à-vis des différents minéraux natifs de l'aquifère. Les résultats sont illustrés au niveau de la figure 62.

On constate que les eaux présentent des degrés de saturation relativement variable par rapport au cortège minéralogique identifié. D'une manière générale, les eaux sont relativement proche de l'équilibre vis-à-vis de certains minéraux tels que la calcite ($IS = -0,44$), la calcédoine

(IS=-0,05), le quartz (IS = 0,24), l'albite (IS = -0,13) ou encore la barite (-0,18). En revanche, les eaux sont sursaturées vis-à-vis des minéraux comme le microcline, l'illite ou encore la muscovite.

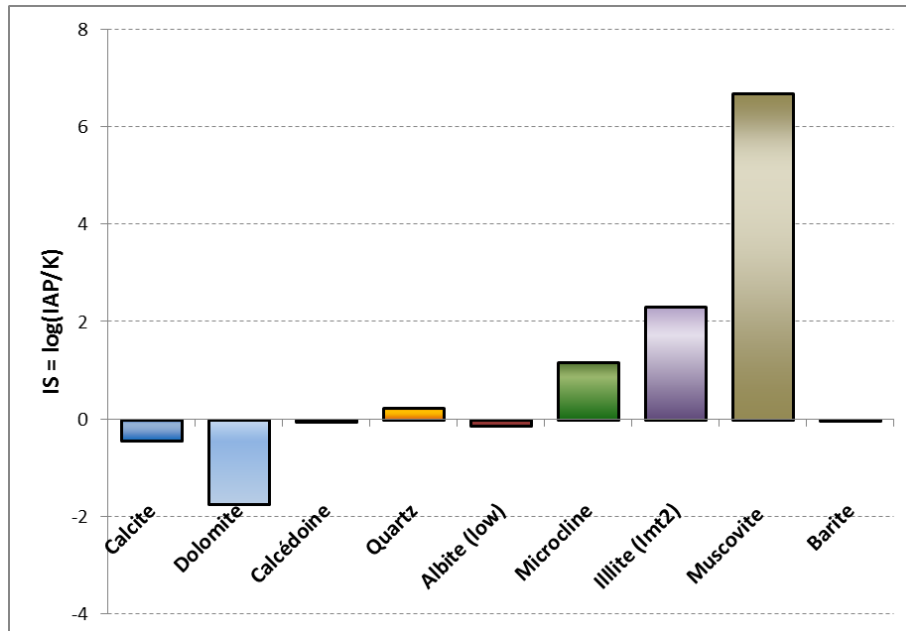


Figure 62 : Indices de saturation calculés d'après les calculs de spéciation

8.2.2 Simulation en « système fermé » ($\log p_{\text{CO}_2} = -1,59$, $P_{\text{CO}_2} = 10^{-1,59}$ atm)

Cette première simulation se propose d'appréhender le comportement du système géochimique en augmentant la température naturelle des eaux (15°C) jusqu'à une valeur de 50 °C, en considérant la pression partielle (fugacité) en CO₂ réelle de l'aquifère, (*i.e* de -1,59 en unité logarithmique ou $P_{\text{CO}_2} = 10^{-1,59}$ atm). Les résultats des simulations sont reportés sur la figure 63.

Ces résultats font apparaître tout d'abord une diminution de la solubilité des minéraux carbonatés, qui se traduit par une augmentation des indices de saturation en fonction de la température. On remarque que l'équilibre avec la calcite n'est atteint qu'au voisinage de 50 °C, la dolomite restant quant à elle constamment en sous-saturation.

Le comportement des autres phases minérales du système montre une tendance d'évolution inverse, avec une diminution des indices de saturation avec l'accroissement de la température, qui traduit une augmentation de leur solubilité. On remarque également que la valeur du pH

diminue légèrement dans la gamme de température concernée, avec des variations de l'ordre de 0,1 unité pH.

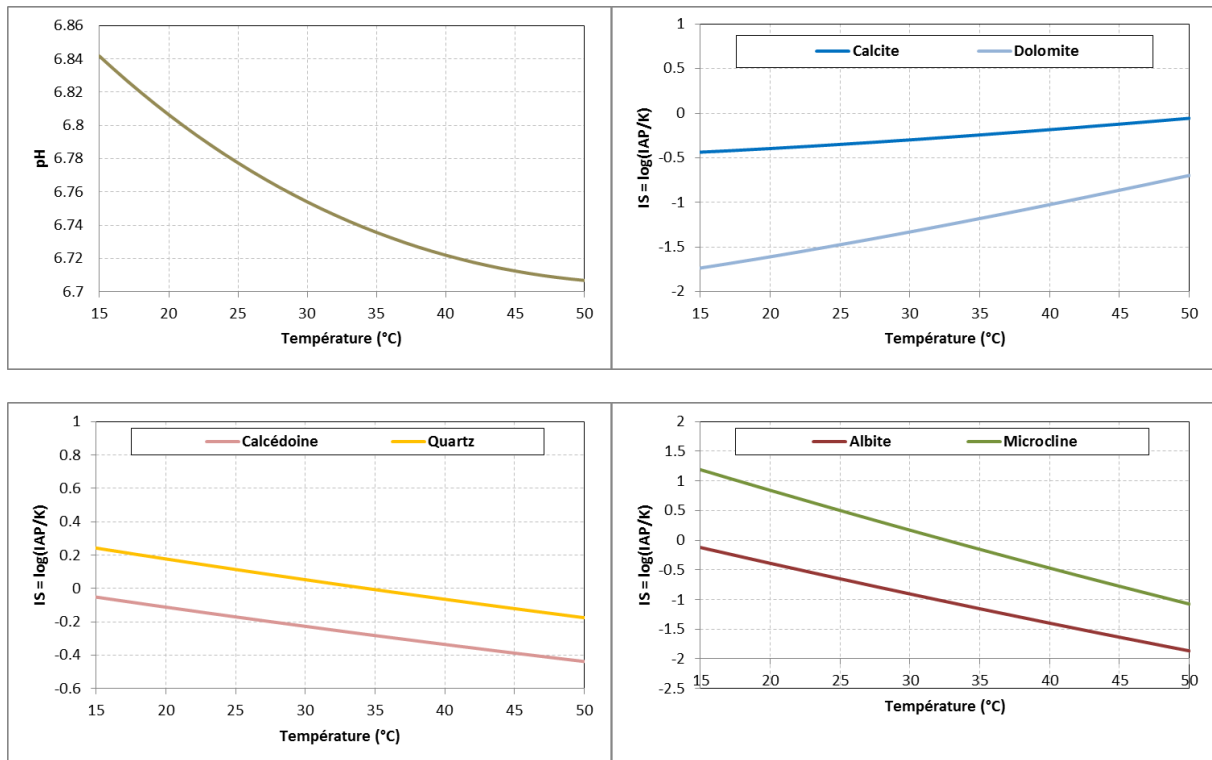


Figure 63 : Incidence d'une hausse de température sur la stabilité des minéraux et sur le pH des eaux de la nappe pour une pression partielle en CO_2 de -1,59 (unité logarithmique)

8.2.3 Simulation en système ouvert ($\log P_{\text{CO}_2} = -3,5$, $P_{\text{CO}_2} = 3,16 \cdot 10^{-4} \text{ atm}$)

Cette seconde simulation a pour principal intérêt de suivre l'évolution de la composition des eaux face aux sollicitations thermiques dans le cas particuliers où ces eaux sont mis au contact avec l'atmosphère, qui se traduit par un équilibrage progressif avec la pression partielle du CO_2 dans l'air (*i.e* de -3,5 en unité logarithmique ou de $10^{-3,5} \text{ atm}$). Ce cas de figure est susceptible de se produire lors du transit des eaux souterraines au travers du circuit primaire, reliant les puits de production et de réinjection. Cette étape de transit en surface comprend par exemple la circulation de l'eau dans des centaines de mètres de conduite ou encore le passage à travers les échangeurs thermiques, autant de sources de perturbation qui sont propices à générer un dégazage de la solution dans le cas où le système n'est pas complètement hermétique.

Les résultats de cette simulation sont exposés dans la figure 64. On constate tout d'abord une augmentation drastique de la valeur initiale du pH des eaux, qui passe de 6,85, à la pression en CO₂ de l'aquifère, à plus de 8,7 dans les mêmes conditions de température.

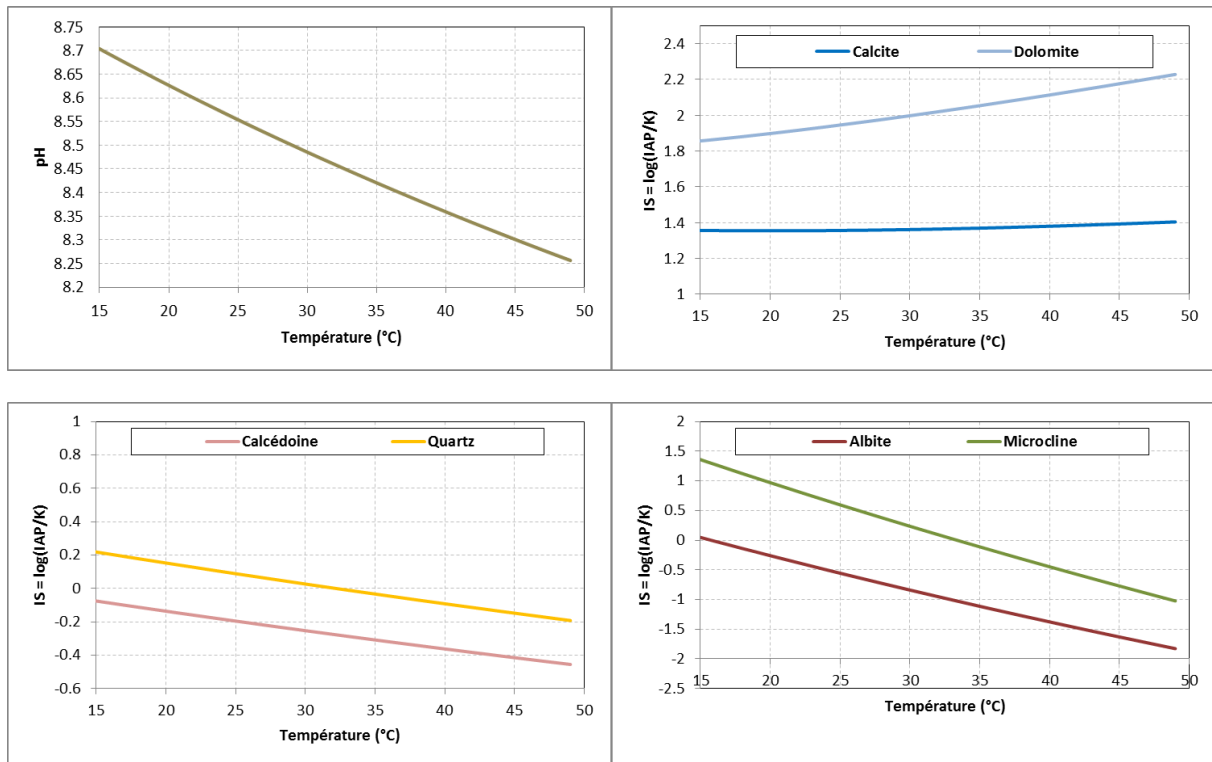


Figure 64 : Incidence d'une hausse de température sur la stabilité des minéraux et sur le pH des eaux de la nappe pour une pression partielle en CO₂ de $10^{-3.5}$ atm (ou -3,5 en unité logarithmique)

Cette augmentation drastique de pH se répercute directement sur l'équilibre calco-carbonique, comme en attestent les valeurs des indices de saturation vis-à-vis des minéraux carbonatés. L'indice de saturation de la calcite par exemple bascule ainsi de -0,44 à $p_{CO_2} = -1.59$ à plus de 1,3 au contact de l'atmosphère. L'augmentation de température consécutive à cette mise à l'équilibre avec l'atmosphère ne fait que renforcer le phénomène précédemment décrit. Si l'on considère que l'ensemble de la calcite au-delà de la saturation précipite instantanément jusqu'à atteindre l'équilibre, on obtient les résultats suivants : pour chaque litre d'eau portée à 50 °C, une quantité équivalente à 0,572 mmol/l de calcite se voit soustraite de la solution. Ces quantités peuvent paraître infime mais en considérant un débit de 30 m³/h, on obtient une quantité de calcite sous forme solide d'environ 41 Kg pour un cycle de fonctionnement en continu de 24h et plus de 2500 Kg pour un cycle de fonctionnement mensuel... Ces précipités sont susceptibles de se déposer au niveau des canalisations, induisant des pertes de charges supplémentaires, ou peuvent être transportées sous forme particulaire jusqu'à l'aquifère (*via*

la phase de réinjection) pouvant engendrer dans ce dernier cas de figure, une réduction de la perméabilité (obstruction des voies d'écoulement) au voisinage de l'ouvrage. Fort heureusement, les analyses effectuées juste avant la réinjection ont révélé que l'eau pompée ne subit pas de modifications de ses caractéristiques, et donc, ne constituent pas une menace pour la pérennité de l'exploitation.

A noter que cette mise à l'équilibre avec la pression partielle n'induit pratiquement pas de modification sur les indices de saturation vis-à-vis des autres phases minérales.

9. Synthèse

Le projet « Serre capteur d'énergie » a permis de fournir à cette thèse un terrain de jeu en grande nature afin évaluer l'influence des rejets thermiques sur la qualité des eaux souterraines. Malheureusement, les craintes émises sur la faisabilité d'un stockage intersaisonnier de chaleur en aquifère se sont vite confirmées *via* l'acquisition des premiers profils thermiques au niveau de la nappe. Les modalités de fonctionnement de l'installation, combinées à une forte vitesse d'écoulement de la nappe, n'ont pas permis de mettre en évidence d'impacts thermiques majeurs susceptibles de porter atteinte à la qualité des eaux au droit du site, les panaches d'eau chaude étant en effet rapidement atténués (en quelques heures) par la formation souterraine.

Cependant, le suivi expérimental a été l'occasion de déployer une approche métrologique aussi exhaustive que possible qui comprend :

- le suivi des principaux descripteurs relatifs au compartiment bactérien (activité, diversité, biomasse). Les résultats obtenus ont notamment permis, via une approche indirecte en laboratoire, de caractériser l'évolution de l'activité bactérienne en réponse à une hausse de température.
- le suivi des principaux paramètres physico-chimiques mesurés sur le terrain et en laboratoire, qui ont montrés une grande constance au cours de la période d'investigation.
- une caractérisation poussée des formations hôtes sédimentaires, qui a servi de base aux modélisations hydrogéochimique ainsi qu'à l'interprétation des données de terrain.

Cette approche globale, mise en œuvre au cours de cette thèse, est le fruit d'une longue réflexion, et a permis de disposer d'arguments solides pour la poursuite des investigations sur d'autres sites, en particulier, le site de la Mairie du 8^e arrondissement à Lyon, qui fait l'objet du prochain chapitre.

Chapitre IV :

**Approche à l'échelle d'une
installation en zone urbanisée
(Lyon)**

1. Cadre générale de l'étude et enjeux

1.1 Aperçu de l'état actuel de la ressource au niveau de l'agglomération lyonnaise

L'agglomération lyonnaise a pu atteindre son stade de développement actuel grâce à une situation privilégiée en matière de ressource en eau. La nappe superficielle des alluvions du Rhône permet en effet de répondre à une grande partie des besoins des collectivités locales, des industriels et des particuliers.

Cette ressource en eau, très attractive du point de vue hydraulique compte tenu de sa puissance, de son étendue et de son accessibilité, a fait l'objet d'une utilisation à des fins énergétiques dès la fin des années 1970, à la suite du premier choc pétrolier. Cette exploitation a connu par la suite un développement croissant pour atteindre un nombre d'installations géothermiques avoisinant les 200 à la fin des années 80 (Chartier *et al.*, 2009). La densité d'installation à cette époque est telle que naissent les premières prises de conscience collectives relatives aux impacts potentiels de ces aménagements sur la qualité de la nappe. Cependant, les études menées se heurtent à certaines difficultés, notamment en ce qui concerne le recensement des installations.

Ce n'est qu'à partir des années 2000 qu'un large programme de recensement des installations (nature, caractéristiques de fonctionnement, etc) accompagné de campagnes de mesures thermiques a été déployé. Ces actions font suite à l'émergence de problèmes récurrents de conflit d'usage, de demandes multiples d'autorisations d'exploiter des débits plus importants associés à des indices d'échauffement thermiques anormaux des eaux de la nappe. A cela s'ajoute la crainte d'un risque sanitaire potentiel lié à l'utilisation des eaux souterraines par les collectivités (irrigation, arrosage, remplissage des fontaines).

L'ensemble des données acquises ont permis de dresser un bilan des aménagements souterrains et d'identifier des secteurs particulièrement sollicités par les PAC, où les températures de rejet peuvent excéder les 25°C (Horizon, 2001, 2002). Certaines zones affichent également des amplitudes thermiques annuelles de plus de 10°C. Cependant, les causes de réchauffement des nappes en milieu urbain étant multiples (urbanisation, influence des cours d'eau, etc), la part liée à la géothermie reste délicate à apprécier. De plus, le manque de références thermiques depuis le développement des PAC rend délicat l'interprétation des données, en particulier pour apprécier la tendance d'évolution pluriannuelle des températures.

Pour l'heure, on dénombre plus de 150 installations géothermiques en service, dont les emplacements sont reportés sur la figure 65.

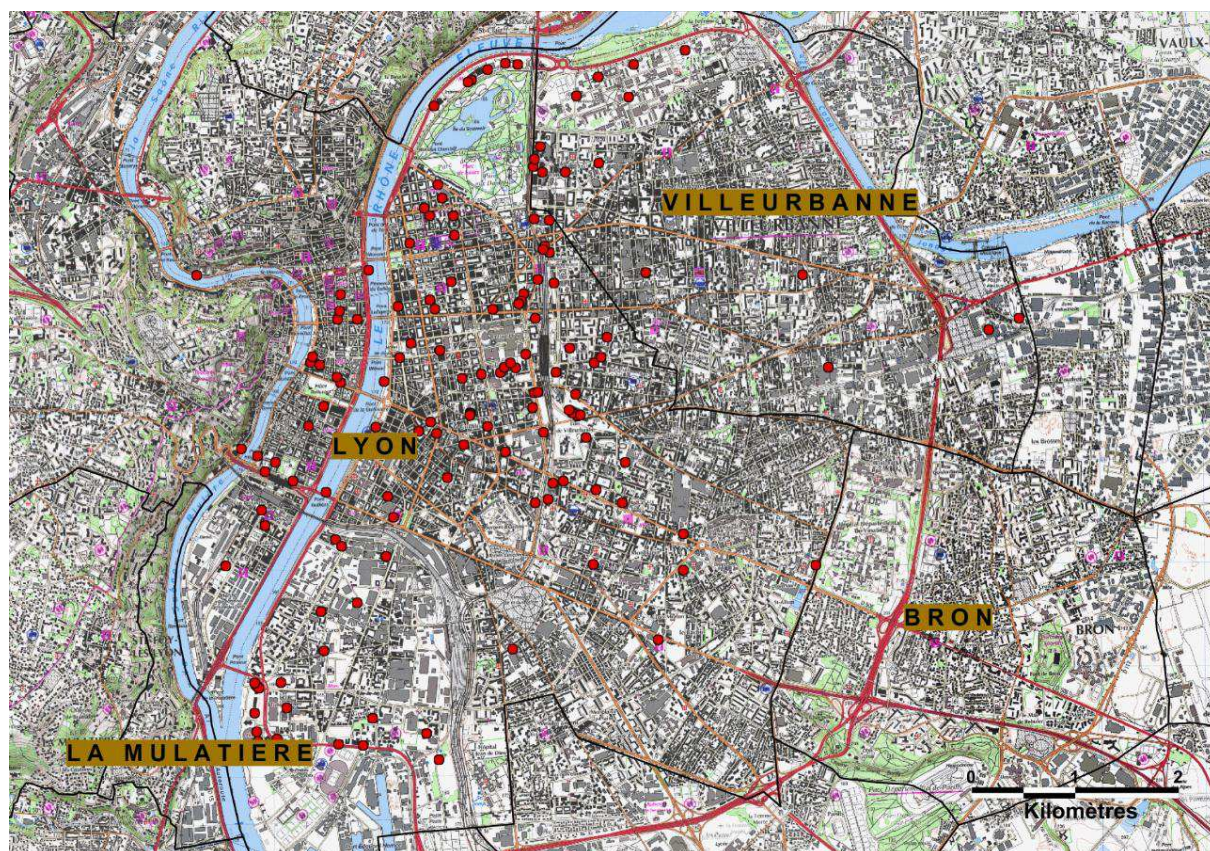


Figure 65 : Cartographie des PAC/CLIM inventoriées dans l'agglomération lyonnaise

Les enjeux actuels sont clairement axés autour de la gestion pérenne de la ressource, qui passe par la mise en place d'une réglementation harmonisée entre les différentes instances en charge de la police de l'eau. Cela sous-entend de pouvoir appuyer les prescriptions par un argumentaire scientifique basé sur la connaissance du comportement de l'aquifère face aux sollicitations thermiques, qui fait cruellement défaut à l'heure actuelle.

1.2 Cadre géologique et hydrogéologique

1.2.1 Contexte géologique

L'agglomération lyonnaise est bâtie à la confluence du Rhône et de la Saône, dans le fossé d'effondrement situé entre la bordure est Massif Central et la région subalpine (fossé

rhodanien). On distingue quatre grands ensembles géologiques, qui reposent sur un substratum cristallin affleurant à l'ouest de la zone d'étude :

- Les formations molassiques, d'âge tertiaire (Miocène), qui s'étendent sous la plaine de l'est lyonnais et constituent le sous-bassement des alluvions quaternaires. Il s'agit de formations détritiques hétérogènes charriées par les Alpes, principalement constituées de sables calcaires et micacés.

- Les formations morainiques, qui tapissent les paléo-reliefs du Miocène et séparent des couloirs bien délimités géomorphologiquement (Décines-Chassieu, Meysieu, Vénissieux-St Priest)

- Les formations fluvioglaciaires déposées lors des phases de retrait successif des glaciers würmien. Il s'agit de formations à caractère sablo-graveleux dominant, qui viennent combler les dépressions situées entre les reliefs molassiques et morainiques décrits ci-dessus (couloirs fluvioglaciaires de l'est lyonnais).

- Les alluvions fluviales modernes, localisées principalement au niveau de la plaine alluviale du Rhône et de la Saône. Le faciès est de type sablo-graveleux à gravelo-caillouteux.

L'agencement schématique de ces différentes formations est représenté sur la coupe géologique en figure 66.

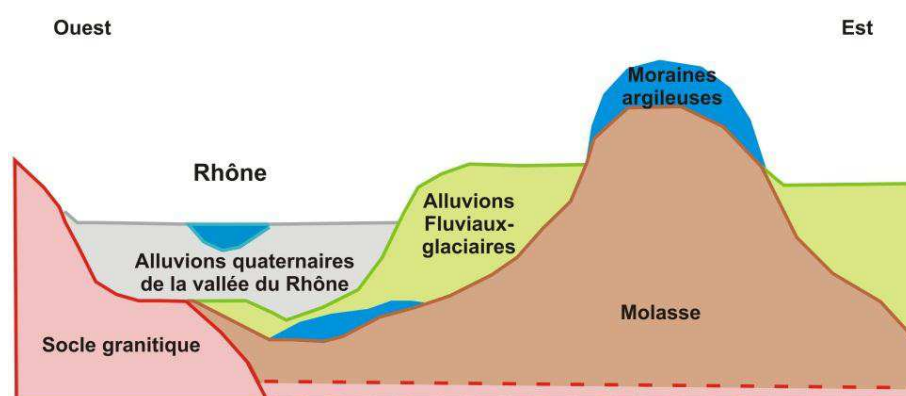


Figure 66 : Coupe géologique Est-Ouest schématique du secteur d'étude (Nicolas et al., 2004)

1.2.2 Contexte hydrogéologique

La zone d'étude comprend quatre entités hydrogéologiques, qui correspondent aux grandes unités géologiques décrites précédemment. La zone étudiée peut être divisée principalement en deux grands domaines (Figure 67) :

- le domaine des nappes des dépôts glaciaires et fluviaux, le long des couloirs fluvio-glaciaires délimités par des buttes morainiques.
- le domaine de la nappe des alluvions modernes du Rhône : ce réservoir, qui s'étend sur la quasi-totalité de la plaine alluviale, est alimenté latéralement par les nappes (qui parcourent les différents couloirs), ainsi que par les pluies efficaces et par le fleuve (nappe d'accompagnement).

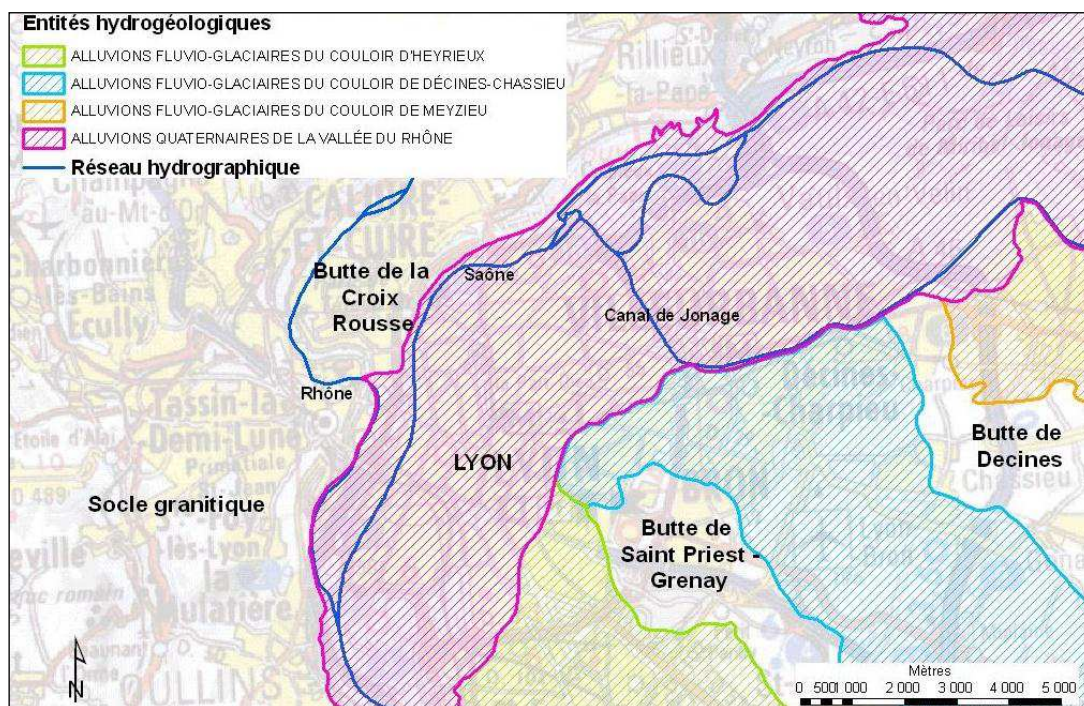


Figure 67 : Principales entités hydrogéologiques présentes au niveau de l'agglomération lyonnaise (Durst et al., 2012)

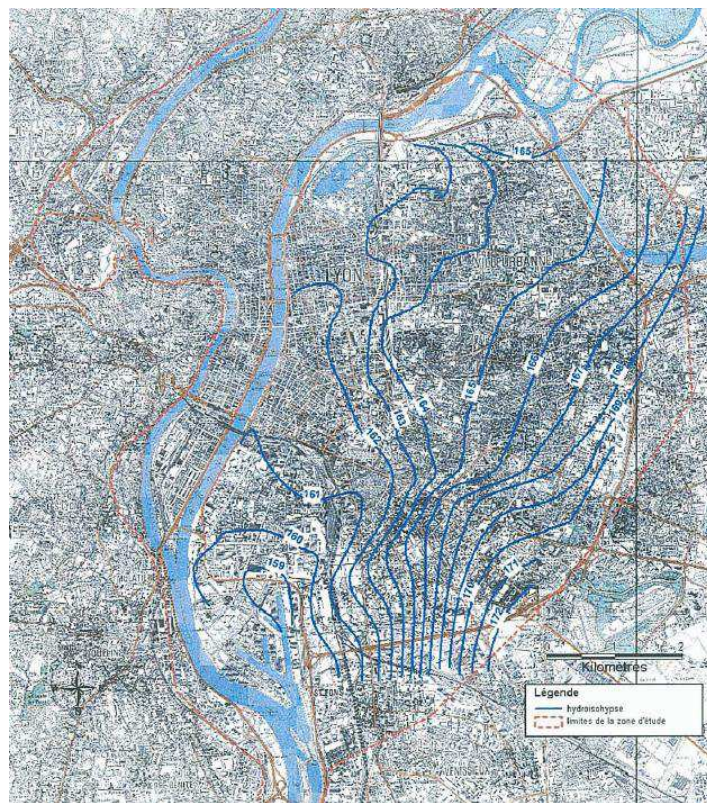
Piézométrie :

L'ensemble des entités forment une nappe à surface libre, dont l'écoulement global est orienté vers l'ouest et le nord-ouest (Figure 68). Les exutoires sont représentés par le réseau

hydrographique (Rhône, Saône notamment) et par le drain de la Compagnie Nationale du Rhône (CNR) au sud-ouest du territoire (commune de Pierre Bénite).

A l'échelle locale, les écoulements souterrains sont plus difficiles à cerner du fait de la présence de multiples aménagements souterrains qui font office de barrière hydraulique (sous-sols, parking souterrains, lignes de métro, trémies routières, etc.) ou encore de la présence de nombreux ouvrages de prélèvements et de rejets existants.

La nappe superficielle est située à faible profondeur, avec un niveau statique moyen situé aux alentours de 5 m.



*Figure 68 : Carte piézométrique de l'agglomération lyonnaise en période de moyennes eaux
(Novembre 2004)*

Hydrodynamisme

Les deux grandes formations alluvionnaires sont caractérisées par une perméabilité importante, en moyenne de $4 \cdot 10^{-3}$ et $8 \cdot 10^{-3}$ m²/s pour les alluvions modernes et fluvioglaciaires respectivement. Les coefficients d'emménagement sont élevés (entre 10 et 20%) et proche de la porosité efficace des formations. Les vitesses d'écoulement sont très

variables suivant le contexte local et s'échelonnent entre quelques dizaines à plus de 3000 m par an (Lepicier et *al.*, 2009).

1.2.3 Projet ImPAC-Lyon

Dans l'objectif de répondre aux attentes des différents acteurs en charge de la gestion de l'eau, un projet de recherche, financé par l'ADEME et le BRGM, a été élaboré dans le but mener des investigations à l'échelle d'une installation présente sur le territoire de l'agglomération lyonnaise. L'objectif *in fine* est d'acquérir des données expérimentales suffisantes pour préciser l'évolution des propriétés physico-chimiques et microbiologiques de la nappe face aux sollicitations thermiques et d'en déduire par la suite les possibilités d'exploitations de l'aquifère. Ce projet est mené en étroite relation avec le Projet Biothermex, qui encadre les travaux de cette thèse.

La première étape de ce programme, qui a vu le jour en 2010, a consisté à sélectionner un site favorable à l'implantation d'un dispositif de suivi quantitatif de la ressource. La démarche a consisté à identifier un doublet géothermique répondant à différents critères, dont les principaux sont énumérés ci-dessous par ordre d'importance :

- Cycle de fonctionnement saisonnier en continu, destiné prioritairement à la production de froid (climatisation).
- Espace disponible au voisinage du doublet pour implanter un réseau de surveillance (piézomètres de contrôle). Cette condition s'est avérée particulièrement délicate à satisfaire compte tenu de la forte emprise urbaine sur le territoire.
- Minimiser les sources de perturbations extérieures, tant du point de vue thermique (proximité d'installations géothermiques, du fleuve, etc.) que du point de vue hydraulique (aménagements souterrains divers : trémie, parking souterrains, etc.).
- Forte puissance de l'installation (débit d'exploitation et différentiel de température élevés) de façon à obtenir des contrastes thermiques marqués vis-à-vis de la température naturelle de la nappe.

A l'issue de cette étape de sélection, le site atelier retenu pour effectuer les expérimentations a été celui de la Mairie du 8^e arrondissement de Lyon. Ce site est présenté dans la section qui suit.

2. Description du site et du dispositif de surveillance

2.1 Doublet géothermique

Le site expérimental retenu est situé dans le 8^e arrondissement de la ville de Lyon. L'installation géothermique se compose d'un doublet géothermique exploitant la nappe des alluvions quaternaires de la vallée du Rhône à des fins de climatisation uniquement. Elle fonctionne à un débit nominal de 40 m³/h durant la période comprise entre juin et septembre et assure le refroidissement des locaux de la mairie, du commissariat de police et de la Maison de la Danse, ces 3 locaux étant contigus. Le transfert des calories des locaux vers la nappe est assuré par des groupes frigorifiques.

2.2 Dispositif de surveillance

En 2010, le site a été aménagé pour permettre le suivi de la propagation du panache thermique dans la nappe. A cette fin, un réseau de surveillance, constitué de quatre piézomètres de suivi a été implanté pour circonscrire la zone d'influence de l'installation géothermique. La position des quatre ouvrages intègre les contraintes d'aménagement du territoire et est illustrée dans le schéma de situation (Figure 69). On distingue :

- *Piézomètres P1 et P4* : implantés tous deux en amont hydraulique du forage de rejet, à une distance de 30 m et 150 m respectivement. Le piézomètre P1 est positionné dans la zone d'influence présumée de l'ouvrage de rejet tandis que le piézomètre P4 est situé à une distance suffisamment grande pour exclure toute influence de l'installation. Il sera ainsi considéré comme un ouvrage « témoin », auquel il sera possible de se référer pour effectuer une comparaison par rapport aux piézomètres temporairement ou continuellement impactés par les rejets thermiques.

- *Piézomètres P2 et P3*: implantés en aval hydraulique du forage de rejet, le long de l'axe d'écoulement de la nappe, à une distance d'environ 50 et 150 m respectivement. Ils sont localisés dans l'aire d'influence présumée du doublet géothermique.

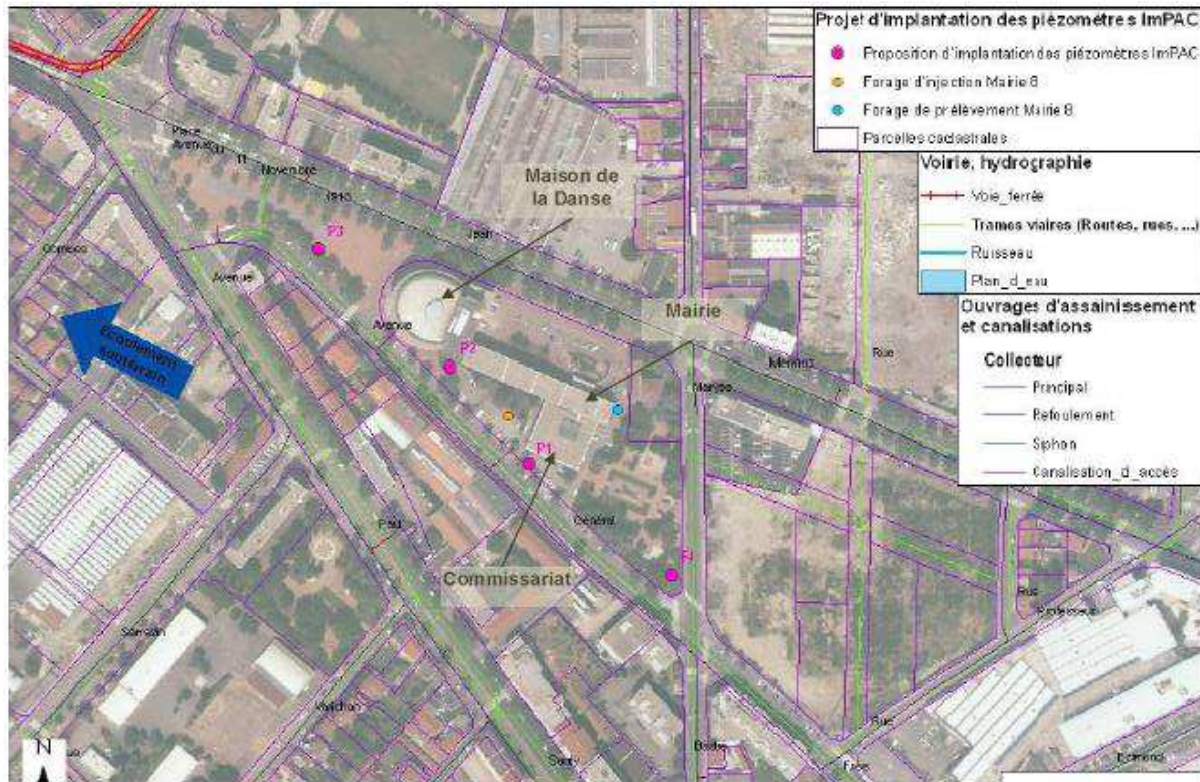


Figure 69 : Configuration du doublet géothermique et du réseau de surveillance crée

L'ensemble des ouvrages présents sur le site (forages d'exploitation et piézomètres) a été équipés de sondes multiparamètres (Qualilog-8, SEBA Hydrométrie) (Figure 70), permettant d'enregistrer en continu les variations des principaux paramètres physico-chimiques non conservatifs (potentiel redox, oxygène dissous, conductivité, température). Compte tenu de la faible épaisseur de la tranche d'eau dans les ouvrages (quelques mètres), les sondes ont été positionnées au milieu de la colonne d'eau.



Figure 70 : Sonde multiparamètres installée dans chaque ouvrage sur le site expérimental

En complément, un programme de suivi a été élaboré pour apprécier l'évolution des paramètres physico-chimiques et microbiologiques de la nappe au droit du site.

3. Caractérisation des formations hôtes sédimentaires

Les différentes analyses décrites ci-dessous ont été réalisées à partir d'un échantillon de carotte obtenu au niveau du piézomètre P1 lors des opérations de foration. L'échantillon a été collecté à une profondeur comprise entre 8,5 et 10 m, correspondant à la partie médiane de la zone saturée.

3.1 Analyses granulométriques

L'analyse granulométrique révèle une forte proportion d'éléments grossiers avec un diamètre médian (d_{50}) de l'ordre de 15 mm, la proportion de particules de diamètre inférieures à 100 μm étant inférieure à 1 %. La figure 71 offre un aperçu visuel de ces observations.



Figure 71 : Carotte de sédiment prélevée sur le piézomètre SP1, entre 8,5 et 10 m de profondeur

3.2 Analyses pétrographiques

D'un point de vue lithologique, la matrice sédimentaire comporte 3 composantes principales, qui sont listées par ordre d'abondance :

- Calcaire bioclastique micritisé ou calcaire oolithique à matrice sparitique (Figure 72).
- Grès/quartzite plus ou moins micacés (Figure 73).
- Silex composé de silice (Figure 74) microcristalline (a) ou fibreuse (b).

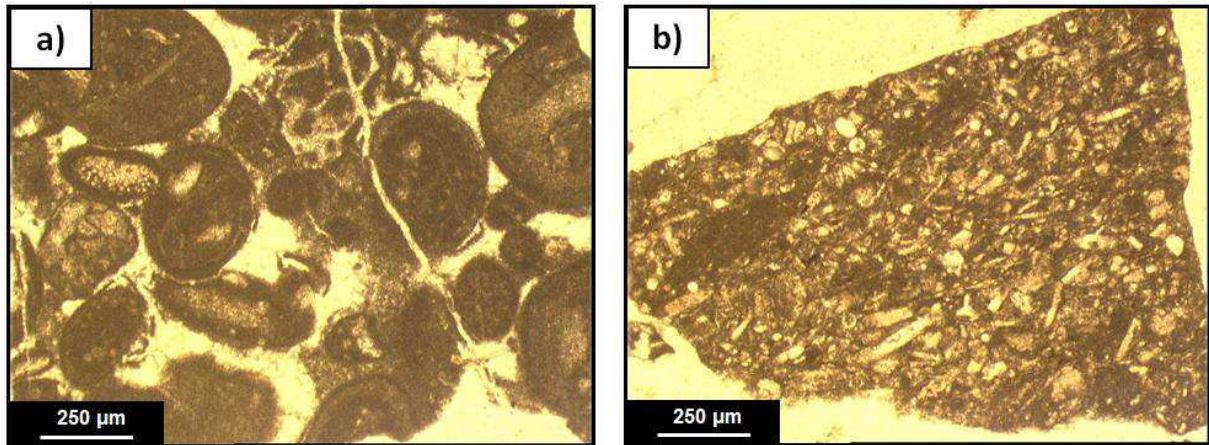


Figure 72 : Images en lumière naturelle d'un grain de calcaire oolithique (a) et d'un grain de calcaire bioclastique (b)

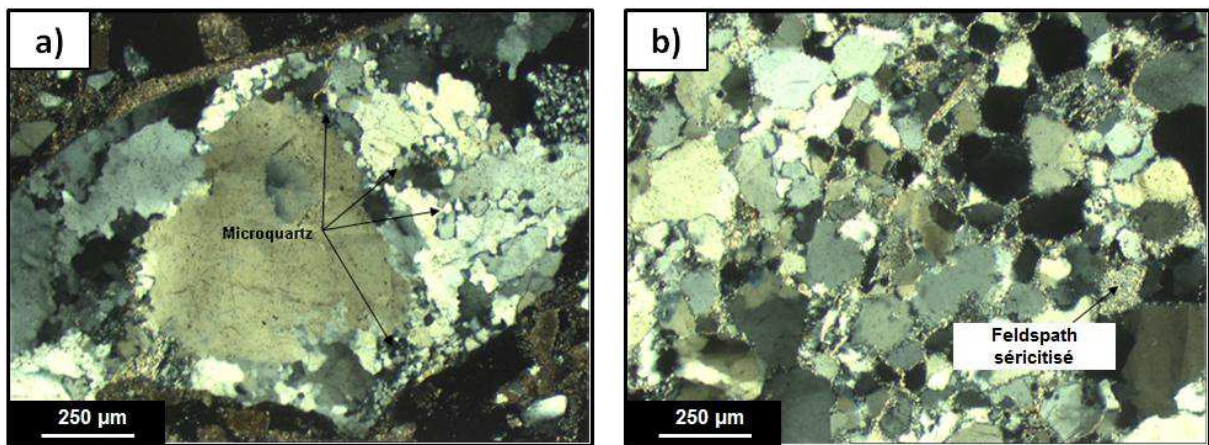


Figure 73 : Images en lumière polarisée de grains de quartzite avec présence de recristallisation (a) et présence d'amas argileux/micacés (b)

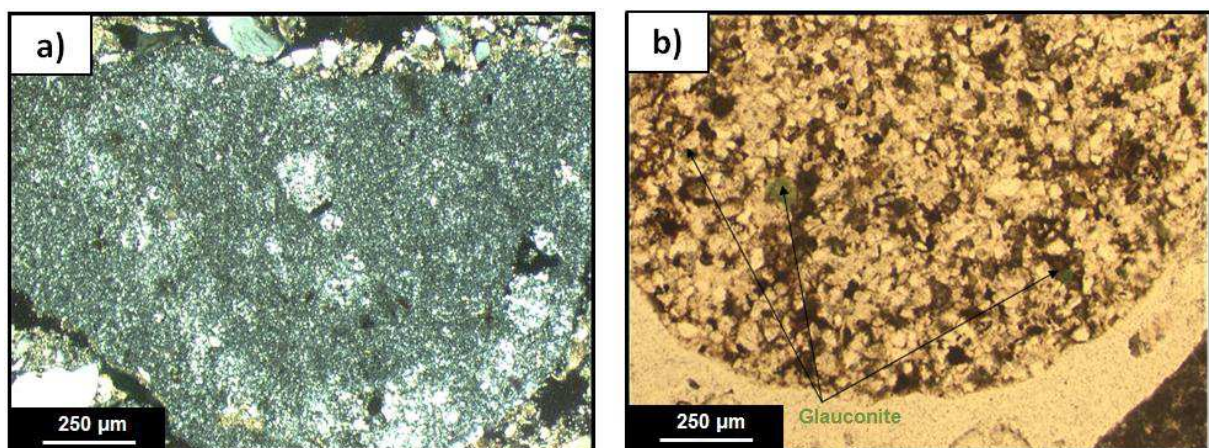


Figure 74 : Images en lumière polarisée d'un grain de silex composé de silice microstalline (a) et d'un grain de calcaire bioclastique avec inclusion de glauconite

D'un point de vue minéralogique, la matrice sédimentaire comprend près de la moitié de minéraux carbonatés, environ 30% de quartz (Figure 73) et 15 % de silice microcristalline ou fibreuse (Figure 74). La fraction restante est représentée par des micas ou argiles, ainsi que des minéraux opaques (type minéraux sulfurés ou oxydes). La roche renferme également quelques traces de glauconite (Figure 74 b), microcline, amphibole et grenats.

Le bilan de cet examen pétrographique montre que la formation sédimentaire résulte d'un assemblage complexe de différents matériaux ayant subi des phénomènes d'altération comme en atteste la présence de microquartz de recristallisation ou encore l'altération des feldspaths (séricitation).

3.3 Analyses minéralogiques

Les phases minérales identifiées à partir des diagrammes sur poudre sont, par ordre d'abondance : le quartz et la calcite (abondance relative de l'ordre de 30% chacun), des feldspaths alcalins (microcline) et plagioclases (albite), associés à certains éléments traces, représentés par des micas et des interstratifiés de type illite ou chlorite.

Les phases minérales constitutives de la fraction phylliteuse sont représentées par des interstratifiés de type illite/chlorite ainsi que par la kaolinite.

3.3 Analyses chimiques globales

Les différents éléments chimiques présents dans la matrice sédimentaire ont été quantifiés par ICP/AES à l'issue d'une phase de dissolution chimique. Cette analyse concerne les éléments majeurs, représentés sous forme d'oxydes, ainsi que les éléments traces, dont les teneurs sont exprimées en ppm. Ces résultats ont été complétés par l'analyse du carbone organique et du soufre total, de la perte au feu ainsi que par la mesure des teneurs en NaO. L'ensemble des résultats obtenus sont reportés dans le tableau 15.

Tableau 15 : Résultats de l'analyse chimique globale du sédiment

Eléments majeurs

Elements	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	K ₂ O	MnO	NaO	TiO ₂	P ₂ O ₅	C _{orga}	S _{total}	PF *
Unité	%	%	%	%	%	%	%	%	%	mg/kg	%	%	%
Résultats	62.4	2.4	<1	20	<1	0.6	0.02	0.34	0.07	483	0.09	0.014	13.1

Eléments traces

Elements	Ag	As	B	Ba	Be	Bi	Cd	Ce	Co	Cr	Cu	La	Li
Unité	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg
Résultats	<0.2	21	2	94	<10	<10	<2	<10	<5	11	<5	<20	<10

Elements	Mo	Nb	Ni	Pb	Sb	Sn	Sr	V	W	Y	Zn	Zr
Unité	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg	mg/kg
Résultats	<5	<20	<10	<10	<10	<10	221	<10	<10	<10	11	34

L'analyse de ce tableau de données fait ressortir une quasi absence de pollution par les éléments traces métalliques (type Cu, Pb, Cd, Zn, Co, etc,...), à l'exception toutefois de l'arsenic, et du chrome, qui affichent des teneurs très modérées. Ces conclusions sont assez surprenantes compte tenu du fort développement industriel qu'a connu le secteur ainsi que de la pression directe du milieu urbain environnant.

Par ailleurs, on constate que le sédiment possède une fraction très limitée de matière organique, qui avoisine les 0,1 %. Ces résultats ont été confirmés par l'analyse de polluants organiques (HAP, PCB, COHV, BTEX) qui n'ont montré aucunes traces de ces composés.

3.4 Mesure de la CEC

Le tableau 16 présente les résultats d'analyses portant sur la mesure de la CEC et des cations échangés en solution.

Tableau 16 : Analyse de la CEC et dosage des cations échangeables

Déterminations	CEC	Ca	K	Mg	Na
Résultats (meq/100g)	3.25	4.2	< LQ (0.1)	0.1	< LQ (0.1)

Les résultats indiquent, tout d'abord, que la valeur de la CEC mesurée est légèrement inférieure à la somme des cations échangeables, phénomène probablement imputable à la dissolution des carbonates présents dans la matrice durant le laps de temps nécessaire pour l'analyse (24 h). Comme précédemment, nous considérerons la valeur issue de la mesure de la cobaltihexamine absorbée comme la valeur de référence.

Hormis ces considérations techniques, on remarque que les cations échangeables fixés par la phase argileuse sont représentés principalement par le Ca, et accessoirement par le Mg.

3.5 Reconstitution de l'assemblage minéralogique

L'ensemble des analyses détaillées ci-dessus ont été intégrées dans l'outil de conciliation minéralogique MINEV (Blanc, 2006, 2007), qui permet par la suite de calculer la composition minéralogique la plus probable. Les résultats de cette reconstitution, exprimés en pourcentage molaire, sont reportés dans la figure 75.

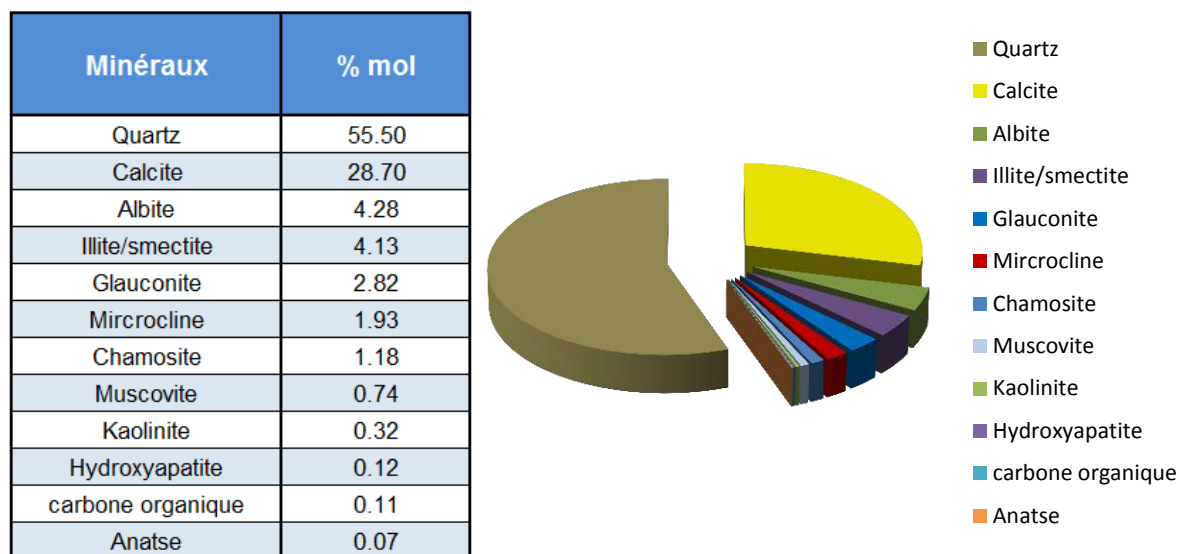


Figure 75 : Composition de l'assemblage minéralogique reconstitué à partir des analyses de la matrice sédimentaire

Afin d'incorporer certains minéraux dans le modèle, certaines concentrations en éléments ont dû être ajustées, afin d'assurer la stœchiométrie de la composition minérale. Il s'agit particulièrement du cas du fer, dont les teneurs se sont révélées être inférieures à la limite de détection analytique. Les corrections apportées ont été effectuées de façon à ce que la concentration totale ne dépasse pas la limite de quantification.

Le bilan de cette reconstitution montre que les résultats obtenus, en particulier la forte proportion de quartz et de calcite, sont en accord avec les descriptions lithologiques des formations. De plus, la plupart des minéraux utilisés dans l'assemblage minéralogique a également été identifié en lame mince.

4. Evolution thermique de l'aquifère

4.1 Composante naturelle : variation saisonnière

4.1.1 Mise en évidence

L'examen des chroniques de température acquies durant la période d'investigation, ont tout d'abord permis de mettre en évidence des variations saisonnières des températures de la nappe, comme en atteste les relevés de température au niveau de l'ouvrage P4 (Figure 76), positionné hors de la zone d'influence du puits de réinjection. La température moyenne annuelle est de l'ordre de 16,5°C, avec une amplitude annuelle voisine de 2°C. Les températures maximales de la nappe sont atteintes en fin d'année (octobre-novembre) et les températures minimales au printemps (avril-mai).

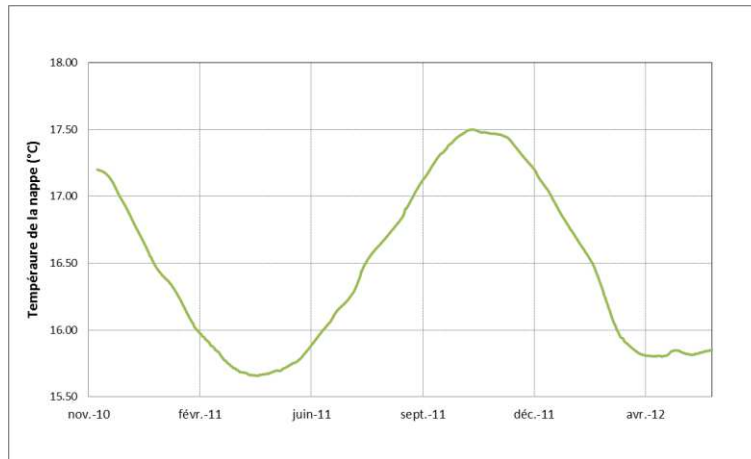


Figure 76 : Température de la nappe relevée sur l'ouvrage P4, en dehors de la zone d'influence de l'installation géothermique

Les autres points d'accès à la nappe présents sur le site présentent également une influence saisonnière mais qui reste plus délicate à apprécier du fait de l'influence des rejets thermiques à proximité.

4.1.1 Analyse de la relation avec la température extérieure

Comme sur le site de Balandran (Chapitre III), la distribution annuelle des températures a été approchée mathématiquement par la fonction sinusoïdale suivante (Taniguchi, 1993) :

$$T_{(t)} = T_m + T_i \sin(\omega t) \quad (\text{IV.1})$$

Où T_i représente la température à un instant t , T_m est la température annuelle moyenne (soit 13°C), T_i est l'amplitude de la variation de température en surface (soit 12,5°C) et ω , la période annuelle (ou $2\pi/365$).

La chronique de température de l'air relevée à proximité du site durant la période comprise entre 2009-2011 (*source : <http://www.meteociel.fr/>*) est approchée de manière satisfaisante par cette relation mathématique (Figure 77).

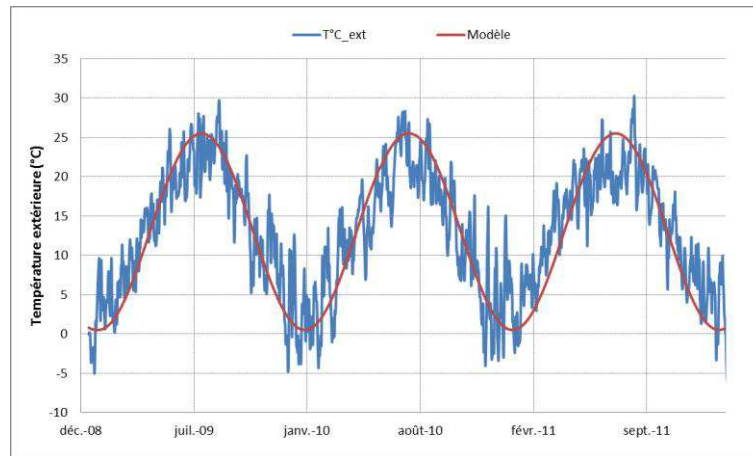


Figure 77 : Approximation de l'évolution des températures extérieures par une courbe sinusoïdale du type $T_i = T_m + T_i \sin(\omega t)$ (selon Taniguchi, 1993)

La comparaison des oscillations de surface par rapport aux fluctuations de température dans la nappe montre que les deux séries temporelles présentent une allure identique (Figure 78), avec toutefois une différence d'amplitude et un déphasage au niveau de la périodicité suivant l'axe du temps. Le décalage temporel donnant la corrélation maximale entre les deux signaux est de l'ordre de 105 jours (~ 3 mois). Ce décalage dans les séries temporelles se justifie par l'influence des échanges conductifs de chaleur depuis la surface.

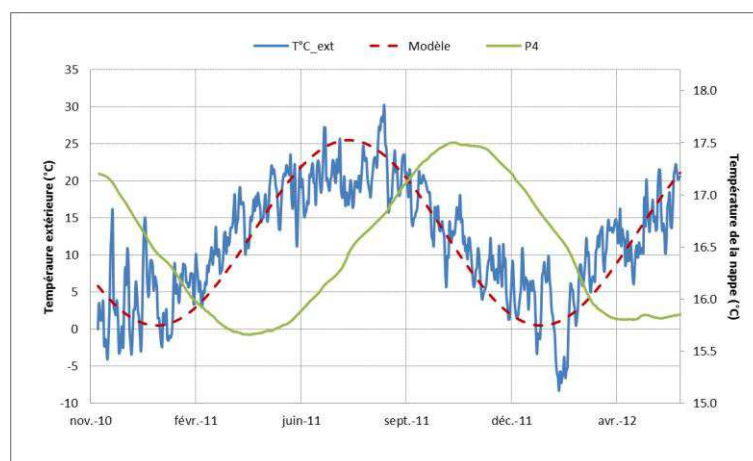


Figure 78 : Température de la nappe et température extérieure sur la période d'investigation

En appliquant l'expression analytique du modèle de transferts conductifs depuis la surface du sol introduite dans le chapitre III, on constate que le modèle permet de reproduire convenablement les oscillations de température relevées dans la nappe (Figure 79), pour une valeur de diffusivité thermique de $9,4.10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$.

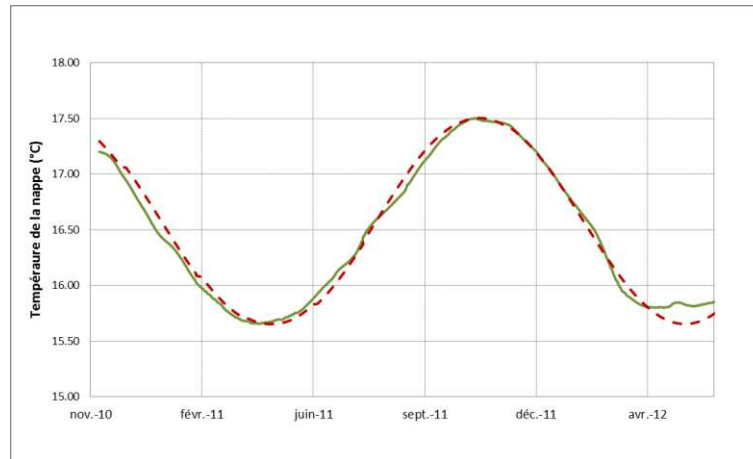


Figure 79 : Comparaison des températures observées et calculées

On en conclut donc que le régime thermique de la nappe, en dehors de toute influence de l'installation géothermique et au niveau du site, est régi par les transferts conductifs de chaleur depuis la surface. A noter toutefois que la valeur de température moyenne annuelle ($16,5^{\circ}\text{C}$) reste relativement élevée en comparaison avec l'historique de températures de surface. Il est en effet couramment admis que la température du proche sous-sol correspond à la moyenne annuelle des températures de surface, soit 13°C dans le cas du secteur d'étude. Il existe donc vraisemblablement d'autres facteurs responsables, à plus ou moins long terme, de ces niveaux de températures.

4.2 Incidence de l'installation géothermique

4.2.1 Doublet d'exploitation

La figure 80 illustre l'évolution des températures relevées au puits de réinjection au cours de l'année. Sont distinguées les températures moyennes journalières des températures minimales et maximales journalières. On constate, tout d'abord, que la température s'accroît nettement dès le début de la période de climatisation (fin avril) et se maintient à des valeurs élevées jusqu'au mois de septembre (température moyenne estivale voisine de 22°C), période correspondant à la fin du cycle de fonctionnement de l'installation. Les puissances thermiques

injectées sont fonction des besoins énergétiques des locaux, eux-mêmes fonction du climat, ce qui explique en partie les variations de température d'injection, qui peuvent excéder les 30°C.

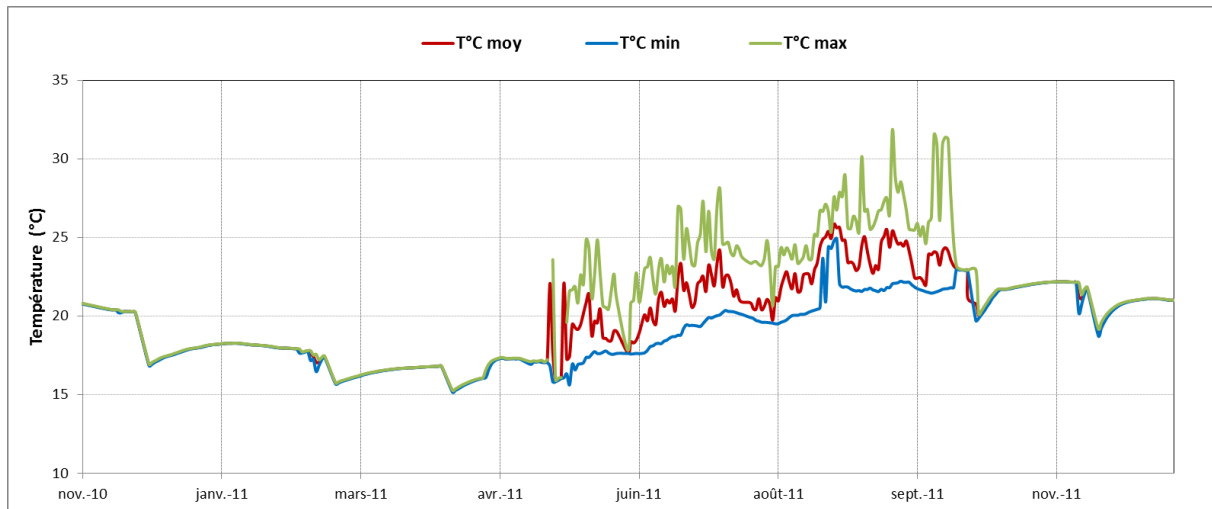


Figure 80 : Evolution des températures de réinjection relevées au puits de rejet

A noter que les « décrochements » de température (chute brutale) observés entre le mois de novembre et début avril, correspondent à la mise en service ponctuelle de l'installation pour l'échantillonnage du puits de production (pompe à demeure) qui présente, à cette époque de l'année, des eaux plus froides que l'ouvrage de rejet.

Par ailleurs, on relève également un dysfonctionnement important de l'installation : l'examen de la chronique des températures au puits de pompage montre clairement que celui-ci se trouve sous l'influence directe du puis de réinjection, les profils d'évolution de températures étant similaires (Figure 81). Un phénomène de recyclage thermique est donc nettement mis en évidence et traduit un dimensionnement parfaitement inadapté de l'installation géothermique en termes d'orientation du doublet, ainsi que d'éloignement des ouvrages.

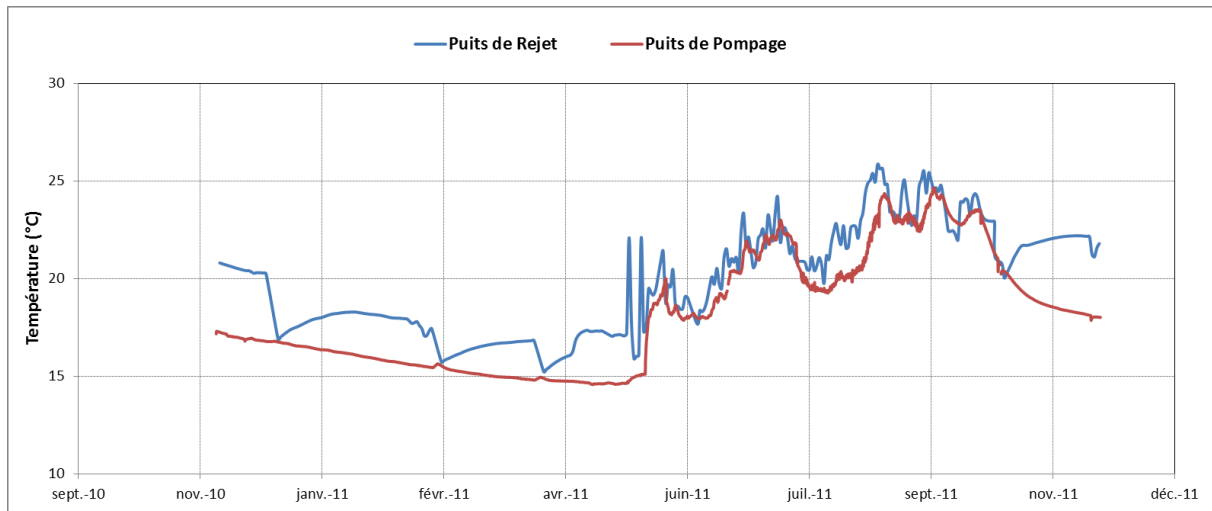


Figure 81 : Comparaison des chroniques de température dans les ouvrages de production et de réinjection.

4.2.2 Piézomètres de suivi

L'évolution en continue des températures au niveau des piézomètres de suivi (Figure 82) permet les observations suivantes :

On constate, tout d'abord, que les piézomètres P1 et P2, situés au voisinage immédiat du puits de réinjection, sont très sensiblement affectés par le cycle de fonctionnement de l'installation.

Le piézomètre P1 réagit rapidement à l'augmentation de la température au puits de rejet, sa température s'élève progressivement tout au long de la période de climatisation pour atteindre, à la mi-septembre, une température excédant les 23°C. Au-delà de cette période, la température décroît progressivement pour se rapprocher de la valeur relevée l'année précédente à la même époque (16,1°C le 01/05/11 contre 16,6°C le 01/05/12).

En ce qui concerne le piézomètre P2, on observe, tout d'abord, un déphasage dans le temps de l'impact du rejet chaud, en raison de son éloignement plus important (que le P1) du point de réinjection. La chronique de température est plus lissée que pour le P1 avec une amplitude thermique moins prononcée, mais un impact plus durable reflétant l'étalement du panache thermique dans le sens de l'écoulement souterrain. Il semblerait également qu'un effet cumulatif, lié aux cycles d'injection interannuels, soit perceptible : à l'instar du piézomètre P1, la température du P2 ne ré-atteint pas la température minimale relevée l'année précédente à la même époque (18,30°C le 01/06/11 contre 19,30°C le 01/06/2012, soit 1°C

supplémentaire). La poursuite des investigations à l'échelle de plusieurs cycles hydrologique permettrait d'appuyer cette observation.

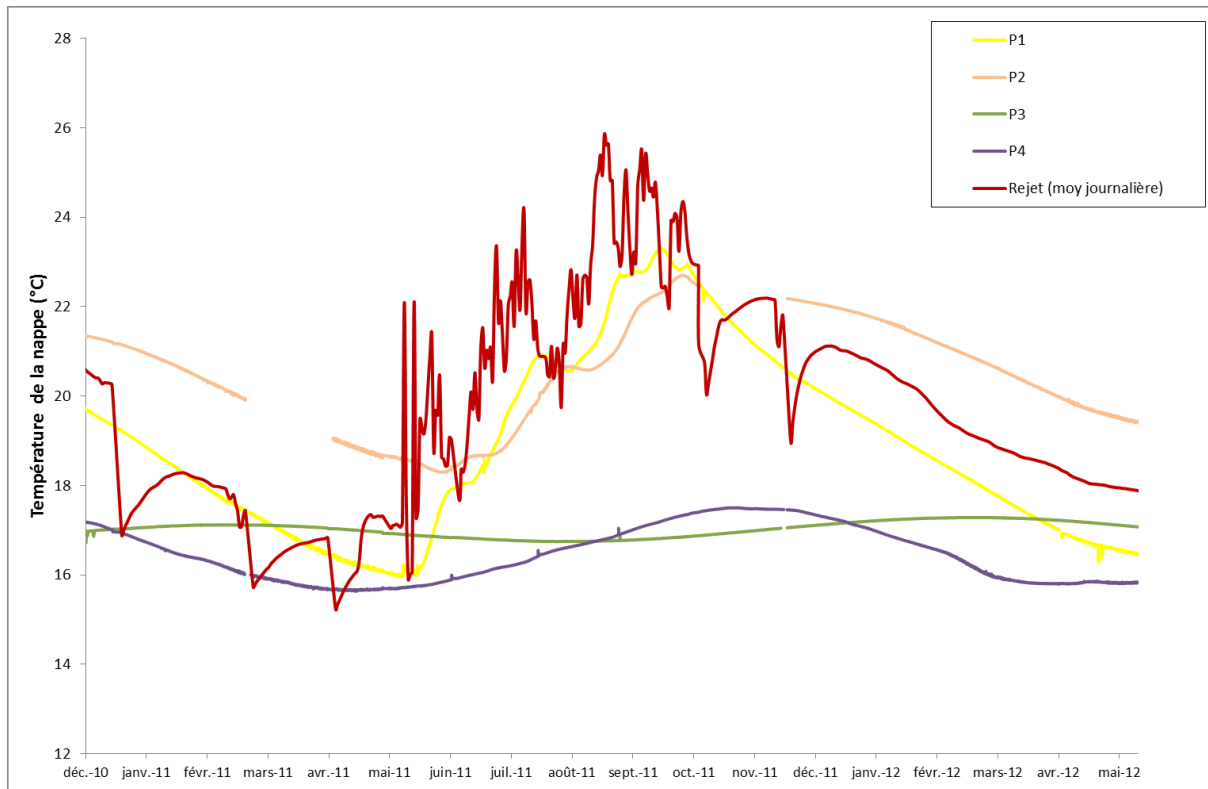


Figure 82 : Evolution du régime thermique de la nappe au niveau des différents ouvrages sur une période de 18 mois

Le piézomètre P3 révèle quant à lui un comportement assez singulier ; celui-ci présente une très faible amplitude thermique annuelle ($< 0,5^{\circ}\text{C}$) et ne semble pas être affecté par les variations saisonnières observées au point P4. Au contraire, les maxima sont atteints au printemps tandis que les minima à l'automne. Ces éléments laissent supposer une influence atténuée du puits de réinjection.

Si l'on regroupe d'un côté, les piézomètres non impactés, et de l'autre, les piézomètres impactés par les rejets thermiques, on observe que les ouvrages impactés présentent une amplitude thermique annuelle en moyenne de $9,6^{\circ}\text{C}$, soit plus de 8,5 fois supérieure à celle rencontrée pour les ouvrages non impactés (Tableau 17). De même, les températures moyennes à l'échelle d'une année sont supérieures de presque 3°C sur les points impactés.

En faisant le bilan de ces observations, il est possible de conclure quant à l'aire d'influence des rejets thermiques. Celle-ci est limitée à moins de 50 m vers l'amont et d'environ 150 m vers l'aval. Un point important concerne la mise en évidence d'un phénomène de recyclage

thermique lié à un dimensionnement inadéquat de l'installation qui conduit inexorablement, à débit de production constant, à l'augmentation progressive de la température des rejets pour satisfaire la demande en frigories.

Tableau 17 : Caractéristiques thermiques des différents ouvrages à l'échelle d'un cycle annuel

Ouvrages	Non Impactés			Impactés				
	P4	P3	Moy	P1	P2	Pompage	Rejet	Moy
Min (°C)	15.63	16.72	16.18	15.96	18.30	14.57	15.12	15.99
Max (°C)	17.50	17.12	17.31	23.30	22.70	24.65	31.83	25.62
Amplitude thermique	1.87	0.40	1.14	7.34	4.40	10.08	16.71	9.63
Moyenne T°C	16.50	16.93	16.72	19.26	20.22	18.23	19.93	19.41

5. Evolution des paramètres physico-chimiques

5.1 Programme d'échantillonnage

Neuf campagnes de prélèvements et analyses ont été réalisées sur l'ensemble de la période couverte par le cycle estival de fonctionnement de l'installation, mais également en dehors de de cette période, en vue d'appréhender les évolutions dynamiques liées aux éventuelles variations saisonnières.

5.2 Caractérisation du profil hydrogéochimique des eaux

La première campagne de mesure sur site a été dédiée à la caractérisation du profil initial des eaux afin d'adapter la stratégie d'étude, puisqu'aucun référentiel n'était disponible sur le secteur. Cet échantillonnage s'est déroulé en dehors de la période de fonctionnement de l'installation et a concerné l'ensemble des ouvrages présents.

Les mesures diagraphiques préalables ont tout d'abord permis de mettre en évidence une bonne homogénéité de la tranche d'eau interceptée par chacun des ouvrages présents sur le site. Un exemple est fourni en annexe 4.

L'examen des concentrations en éléments majeurs montre que les eaux de la nappe sont caractérisées par un faciès de type bicarbonaté calcique et magnésien. Le report des analyses

sur le diagramme de Piper révèle un groupe d'échantillon très homogène sur l'ensemble du secteur d'étude. Pour la clarté de l'illustration, seuls les résultats d'analyses des 4 piézomètres ont été projetés sur le diagramme. Les ions dominants sont principalement représentés par le calcium et l'ion hydrogénocarbonate (diagramme de Stabler, Figure 83).

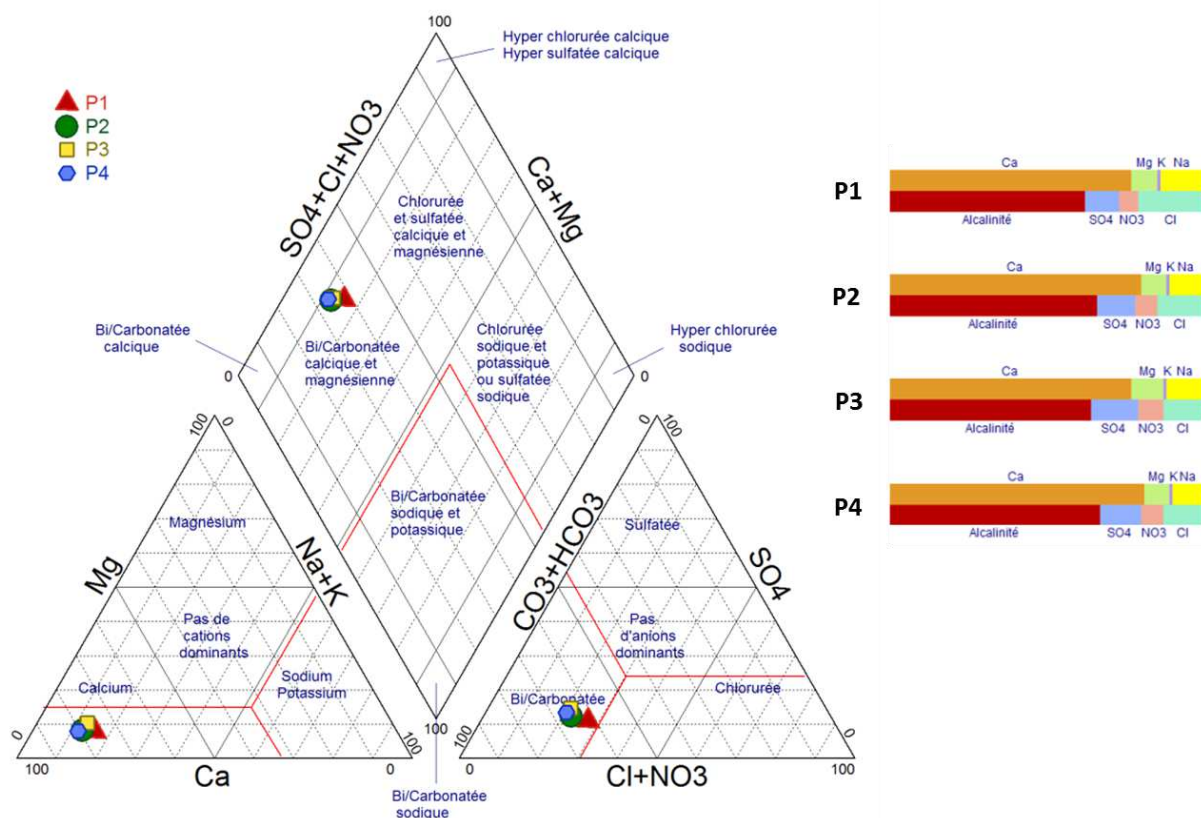


Figure 83 : Diagramme de Piper et de Stiff avec positionnement des eaux de 4 piézomètres

L'analyse des paramètres non conservatifs permet de compléter la description précédente :

- la moyenne des valeurs de pH enregistrées s'établit aux alentours de 7,16, c'est-à-dire proche de la neutralité.
- le niveau d'oxygénation est élevé et proche de la saturation, ce qui concorde avec la typologie de l'aquifère rencontré (nappe libre sous faible couverture). Les fortes valeurs du potentiel d'oxydo-réduction (> 400 mV/ENH) corroborent ces observations.
- les valeurs de conductivité sont modérées, oscillant entre 744 et $762 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$ à 25°C .

L'analyse d'un large éventail de micropolluants organiques et inorganiques révèle quelques traces de solvants halogénés à des concentrations minimales (quelques $\mu\text{g/l}$), ainsi que des

teneurs en éléments traces métalliques ou métalloïdes (As, Cd, Pb, ...), qui ne sont pas sujettes à représenter un risque.

Le bilan de cet échantillonnage initial, réparti sur l'ensemble du secteur d'étude, montre une bonne homogénéité apparente du milieu, ainsi qu'une eau présentant des critères de qualité jugés satisfaisants.

5.3 Evolution des caractéristiques de l'eau

5.3.1 Vérification de la cohérence des analyses

L'exploitation des données hydrochimiques requiert au préalable de vérifier la qualité des résultats d'analyses, via le calcul de l'électroneutralité de la solution, définie par la relation suivante :

$$E(\%) = 100 \cdot \frac{\sum A_i - \sum C_i}{\sum A_i + \sum C_{i(t)}} \quad (\text{IV.2})$$

Avec A_i , la charge portée par l'anion i (en eq/kgw) et C_i , la charge portée par le cation i (en eq/kgw).

Pour les 52 spéciations calculées correspondants au 52 prélèvements, l'erreur d'électroneutralité reste inférieure à 3 % (sauf un point à -3,6 %). Une telle erreur est tout à fait acceptable et révèle la bonne inter-cohérence des analyses réalisés en laboratoire et *in situ* et la fiabilité des résultats du calcul de spéciation.

5.3.2 Suivi des indices de saturation

L'indice de saturation exprime le degré d'équilibre chimique entre l'eau et un minéral présent dans la matrice de l'aquifère et peut être considéré comme une évaluation des processus de dissolution et/ou précipitation au sein de l'aquifère.

Pour les 52 spéciations calculées, les indices de saturation de quelques minéraux carbonatés ont été évalués (Figure 84). Pour l'ensemble des prélèvements, l'eau de l'aquifère est proche de l'équilibre avec la calcite (CaCO_3), ce qui concorde avec la nature géologique de la formation et l'identification de ce minéral en analyse solide. L'eau de l'aquifère est également équilibrée avec une dolomite, $\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$, ordonnée ou bien cristallisée. Ce minéral n'a pourtant pas été détecté par DRX et la quantité de Mg dans la phase solide reste sous la limite

de quantification ($LQ = 1 \text{ \% MgO}$). Il est fort probable que les carbonates soient essentiellement sous forme de calcite avec une faible proportion contenant du magnésium ; cette proportion étant suffisamment importante pour expliquer la concentration en magnésium dans les eaux mais, suffisamment faible pour ne pas être détectée dans les analyses solides. L'eau de l'aquifère est sous-saturée vis-à-vis des autres minéraux carbonatés étudiés (rhodochrosite MnCO_3 par exemple). L'équilibre avec la calcite ne varie ni avec le pH (de 6,9 à 7,2), ni avec la température de l'eau (de 14 à 23°C). Cette stabilité permet de déduire également un équilibre de l'aquifère avec une phase gaz contenant de 1 à 4 % de CO_2 , c'est-à-dire plus riche en CO_2 que l'atmosphère (0,03 % environ).

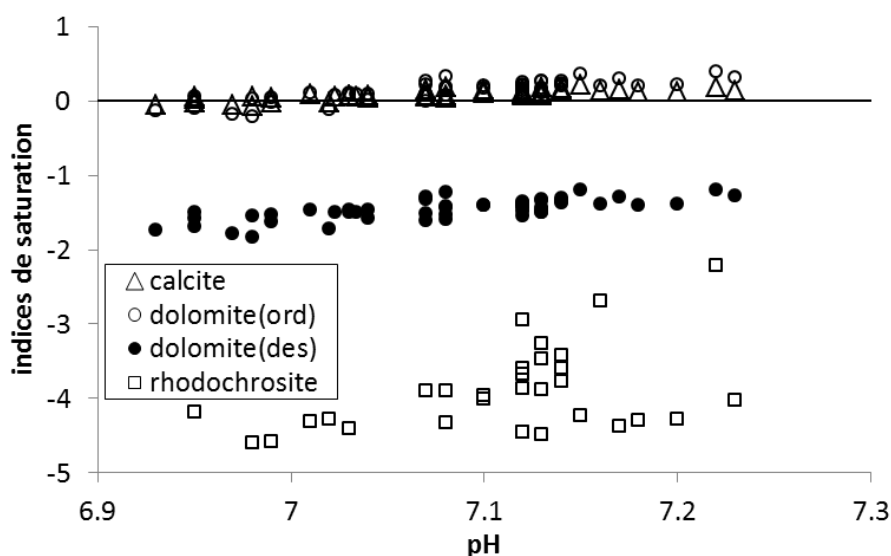


Figure 84 : Indices de saturation des eaux prélevées vis-à-vis de quelques minéraux carbonatés (calcite CaCO_3 , dolomite $\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$ ordonnée ou désordonnée et rhodochrosite MnCO_3) en fonction du pH.

Les analyses solides ont montrées une grande quantité de sable identifiée en DRX comme du quartz. En accord avec ces analyses, les prélèvements d'eaux montrent un équilibre intermédiaire entre le quartz et la calcédoine, deux formes cristallisées de formules SiO_2 . Aucune variation significative de cet équilibre en fonction de la température de l'aquifère, qui évolue entre 14 et 23°C, n'est constatée (Figure 85).

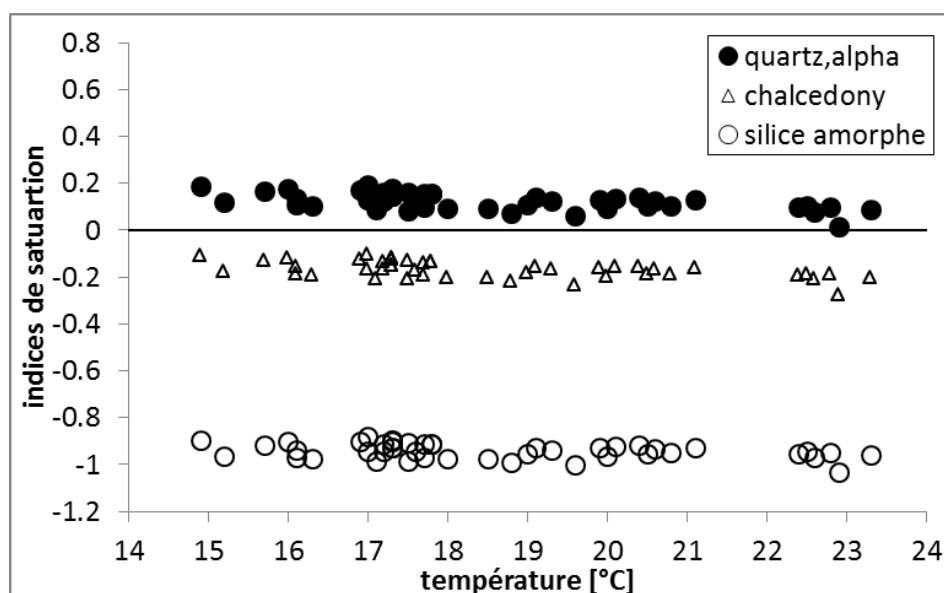


Figure 85 : Indices de saturation des eaux prélevées vis-à-vis de la silice (SiO_2) plus ou moins bien cristallisée en fonction de la température.

L'eau est également proche de l'équilibre vis-à-vis de certains feldspaths alcalins tels que le microcline ou la sanidine (KAlSi_3O_8). L'eau est sursaturée vis-à-vis de la kaolinite ($\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$) avec un indice de saturation d'environ 3. Une légère sous-saturation (IS d'environ -1) vis-à-vis de l'albite ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$) est observée. Étant donné que la concentration aqueuse en fer dissous se situe en dessous de la limite de quantification, les indices de saturation des minéraux contenant du fer ne peuvent pas être analysés avec précision.

5.3.3 Potentiels d'oxydo-réduction

Le calcul de spéciation permet d'évaluer l'état d'oxydoréduction global du système et d'identifier certains mécanismes réactionnels responsables de la composition de la solution (couples électroactifs). Pour chaque spéciation, le potentiel d'oxydoréduction d'un couple a été calculé selon la relation (III.5), définie dans le chapitre III.

Selon la disponibilité des concentrations mesurées en oxydant et en réducteur, le potentiel redox de certains couples peut être calculé sur un nombre restreint d'échantillons d'eau :

- pour l'ensemble des points de prélèvement la mesure *in situ* de la concentration en dioxygène dissous permet de calculer le potentiel d'oxydo-réduction du couple $\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}$;

- pour deux points (P1 de la campagne de juin 2011 et P3 de la campagne de décembre 2010) des mesures en laboratoire des teneurs en nitrites (NO_2^-) sont disponibles en plus de la teneur en nitrates (NO_3^-) permettant le calcul du potentiel redox du couple $\text{N}^{\text{III}}/\text{N}^{\text{V}}$.

L'ensemble des résultats obtenus est présenté sur le diagramme potentiel redox (pe) versus pH des espèces azotées. Comme observé sur le site de Balandran, ainsi que rapporté plus largement dans les eaux naturelles (Lindberg et Runnells, 1984 ; Washington *et al.*, 2004), de larges variations de potentiel sont observées selon les couples redox, ce qui montre que les réactions d'oxydoréduction ne sont pas à l'équilibre dans l'aquifère.

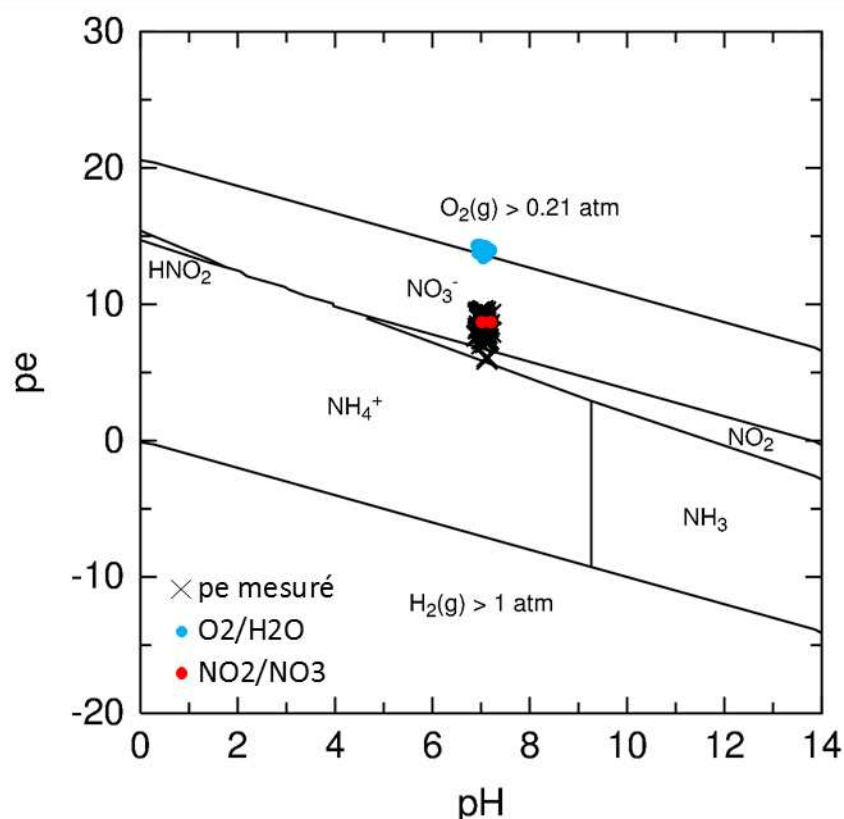


Figure 86 : Diagramme potentiel redox vs. pH de l'azote ($0,6 \mu\text{mol N/l}$, 25 C , non-prise en compte du N_2) et position des points des prélèvements d'après le pH et le potentiel redox mesurés *in situ*, et les potentiels redox calculés des couples $\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}$, NO_2/NO_3 .

Étant donné le déséquilibre redox de ces eaux, la mesure *in situ* du potentiel d'oxydo-réduction ne constitue pas une mesure fiable et complète de l'état d'oxydo-réduction des eaux. En revanche, le potentiel redox mesuré *in situ* semble correspondre essentiellement au couple NO_3/NO_2 .

L'évolution des mesures de potentiel d'oxydo-réduction sur 2 ouvrages de suivi, impactés ou non par le panache d'eau chaude (P1 et P4 respectivement), est reportée sur la figure 87. On note, tout d'abord, que l'évolution des potentiels d'électrode est marquée par une certaine stabilité au cours du temps pour les deux ouvrages. Par ailleurs, cette illustration confirme l'absence d'une quelconque incidence des rejets thermiques sur la mesure.

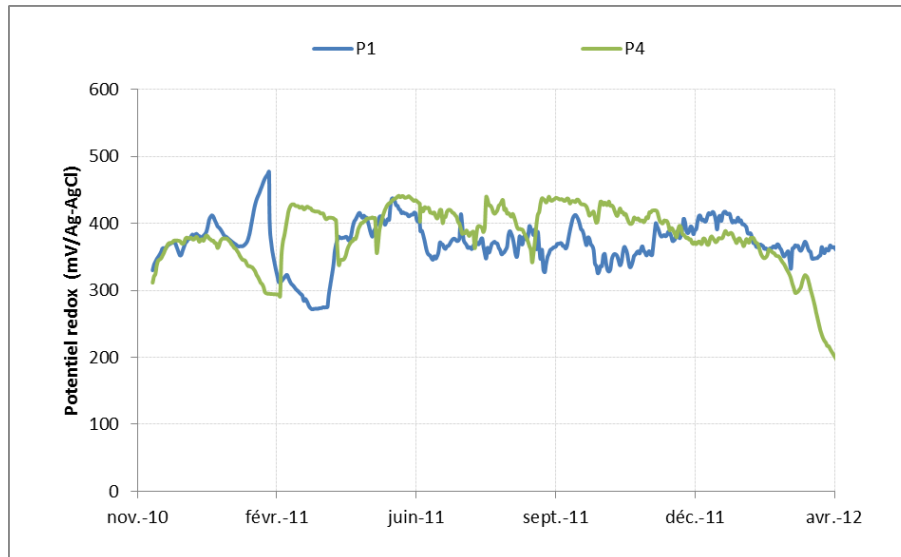


Figure 87 : Evolution du potentiel d'oxydo-réduction entre le piézomètre P4, non impacté, et le piézomètre P1, fortement impacté par les rejets thermiques

5.3.4 Suivi de l'oxygène dissous

L'utilisation du dispositif de mesures en continu a permis l'enregistrement des teneurs en oxygène dissous au niveau des différents points d'accès à la nappe. Les figures 88 et 89 présentent les résultats obtenus au niveau des piézomètres impactés par les rejets thermiques (P1 et P2) ainsi qu'au niveau des piézomètres non impactés, représenté par le piézomètre P4.

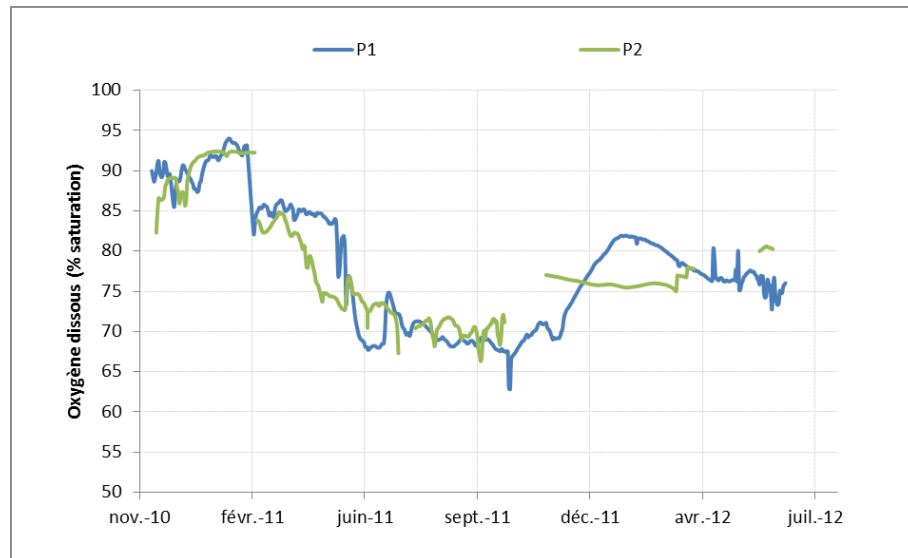


Figure 88 : Evolution des teneurs en oxygène dissous au niveau des piézomètres impactés (P1 et P2)



Figure 89 : Evolution des teneurs en oxygène dissous au niveau du piézomètre non impacté (P4)

Les résultats obtenus font apparaître que l'évolution temporelle des teneurs en oxygène dissous est similaire entre les différents ouvrages de suivi. La tendance générale montre que les eaux s'appauvrissent progressivement en oxygène durant la période comprise entre le mois de juin et le mois d'octobre-novembre, puis les teneurs augmentent progressivement pour atteindre une saturation maximale en début d'année (mars-avril). Les données acquises durant cette période de temps ne permettent cependant pas d'extrapoler cette tendance à l'échelle pluriannuelle. Dans tous les cas, aucun déficit en oxygène n'a été enregistré sur l'ensemble de

la période sur les ouvrages considérés. Il semblerait donc que l'évolution des teneurs en oxygène soit rythmée par les variations saisonnières de température.

6. Evolution des paramètres microbiologiques

6.1 Suivi de l'évolution du nombre de bactéries

6.1.1 Évolution saisonnière de la quantité de germes totaux

Le nombre de bactéries varie, sur la période de temps considérée et selon les ouvrages, entre $1,58 \times 10^4$ et $6,48 \times 10^5$ par millilitre d'eau souterraine. Cette quantité de bactéries est tout à fait conforme à celle retrouvée dans la littérature pour les nappes d'eaux superficielles (Goldscheider *et al.*, 2005). L'illustration ci-dessous présente, à titre indicatif, l'aspect des cellules bactériennes en microscopie à épifluorescence (Figure 90).

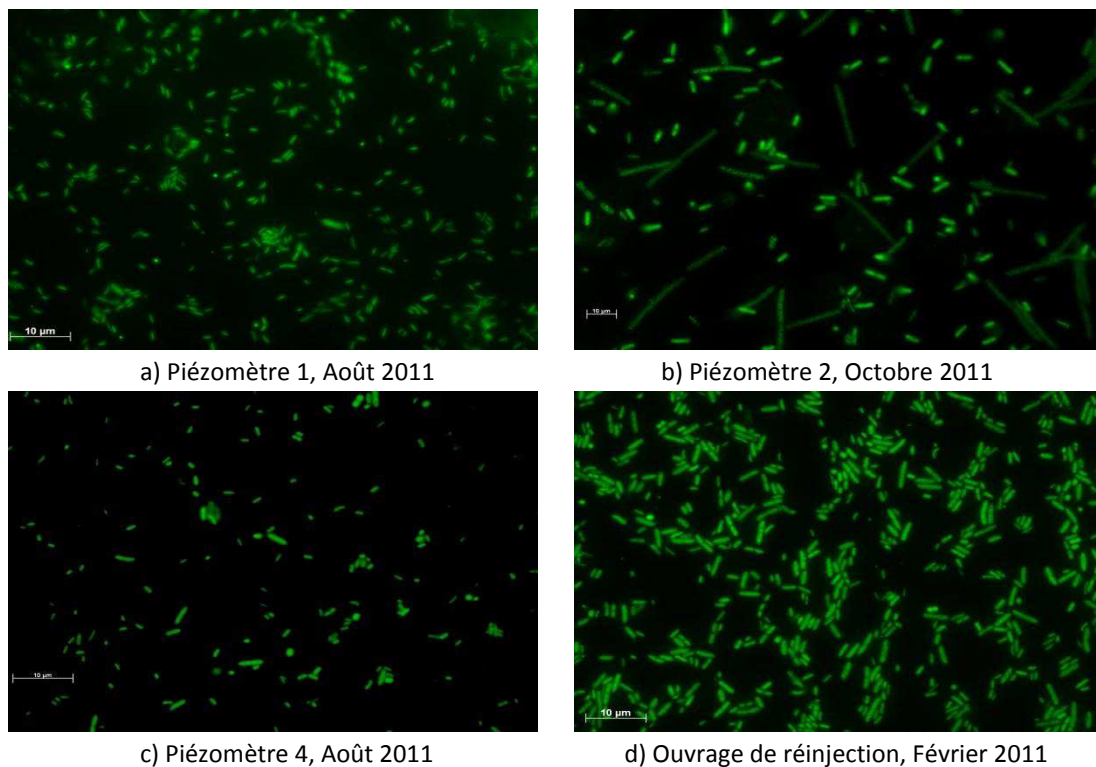


Figure 90 : Observations en microscopie en épifluorescence, sur membranes de filtration, des bactéries après marquage à l'acridine orange.

Les résultats obtenus sur l'ensemble de la période d'étude, en fonction des différents points d'échantillonnages sont reportés sur la figure 91.

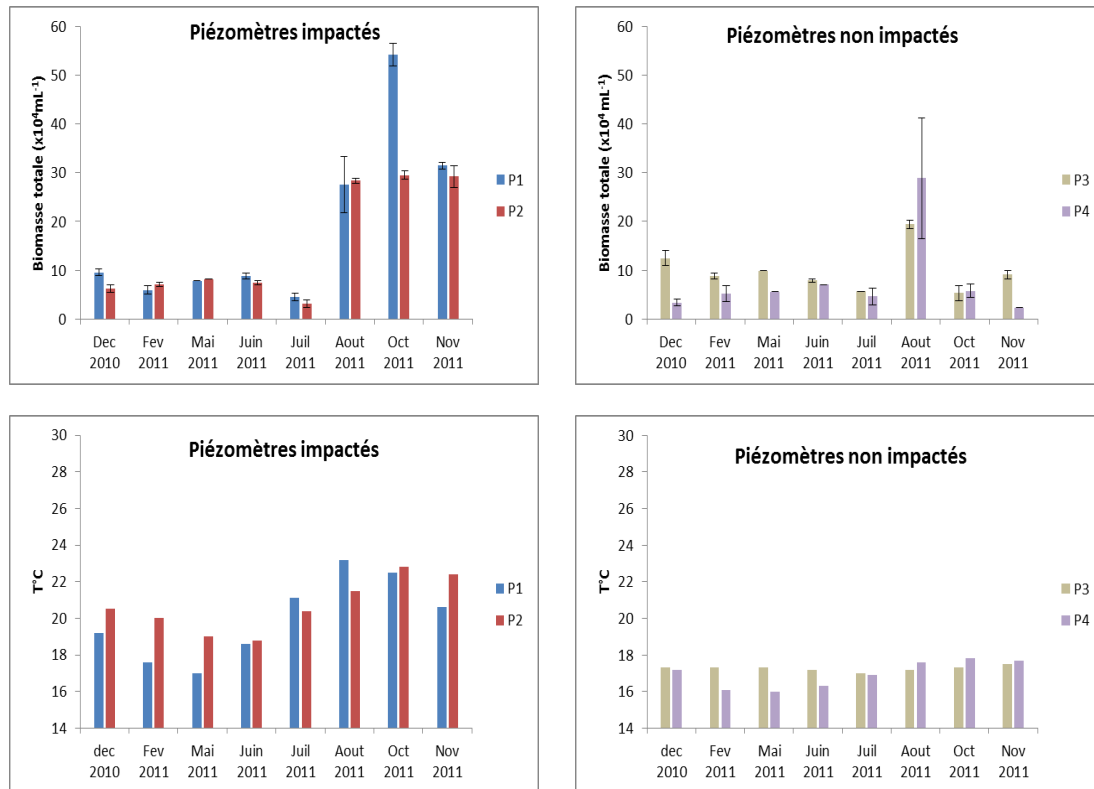


Figure 91 : Evolution du nombre totale de bactéries et des températures de prélèvements correspondantes sur les différentes campagnes de prélèvements.

Afin d'évaluer s'il existe une différence significative entre la quantité de biomasse présente entre la zone fortement impactée par les rejets thermiques et la zone non impactée, des tests statistiques (i) de Mann & Whitney sur les rangs des valeurs et (ii) des tests exacts de permutation sur les valeurs quantitatives ont été mis en œuvre. Les résultats obtenus ne montrent aucune différence significative entre les deux zones d'études, au seuil usuel de 5 %, à la fois sur la période annuelle, mais également en ne ciblant que la période estivale (juin à octobre), correspondant à la période de fonctionnement de l'installation géothermique.

Même si aucune corrélation n'a pu être mise en évidence entre la quantité de bactéries et le niveau thermique atteint dans les zones fortement impactées thermiquement et dans les zones peu ou pas impactées, des tests statistiques supplémentaires ont été effectuées à l'échelle de chaque piézomètre afin de déceler si la température serait susceptible d'exercer une action significative. Le test de corrélation des rangs de Spearman a été appliqué pour rechercher l'existence d'une relation entre la densité bactérienne et les niveaux de température relevés. La corrélation est positive et significative (au risque de 2,5 %) pour l'ensemble des ouvrages impactés (puits de réinjection et piézomètres 1 et 2), mais le résultat du test est très proche de

sa limite de validité. Il semblerait donc, qu'à l'échelle des points d'observations (piézomètres), la teneur en bactéries soit corrélée au niveau de température. À noter toutefois que la température n'explique qu'une partie de la variabilité détectée et qu'aucune autre relation avec les autres paramètres physicochimiques (carbone organique total ou dissous, pH, ...) mesurés n'a pu être mise en évidence. Il est ainsi, fort probable, que d'autres sources de variabilité interviennent : variations saisonnières et/ou échanges avec le compartiment de surface (fuites réseaux enterrés, couverture végétale variable selon les points d'observations,...).

La figure 92 ci-dessous illustre, à titre indicatif, la relation existante entre la température et la quantité de bactéries pour chacun des ouvrages concernés.

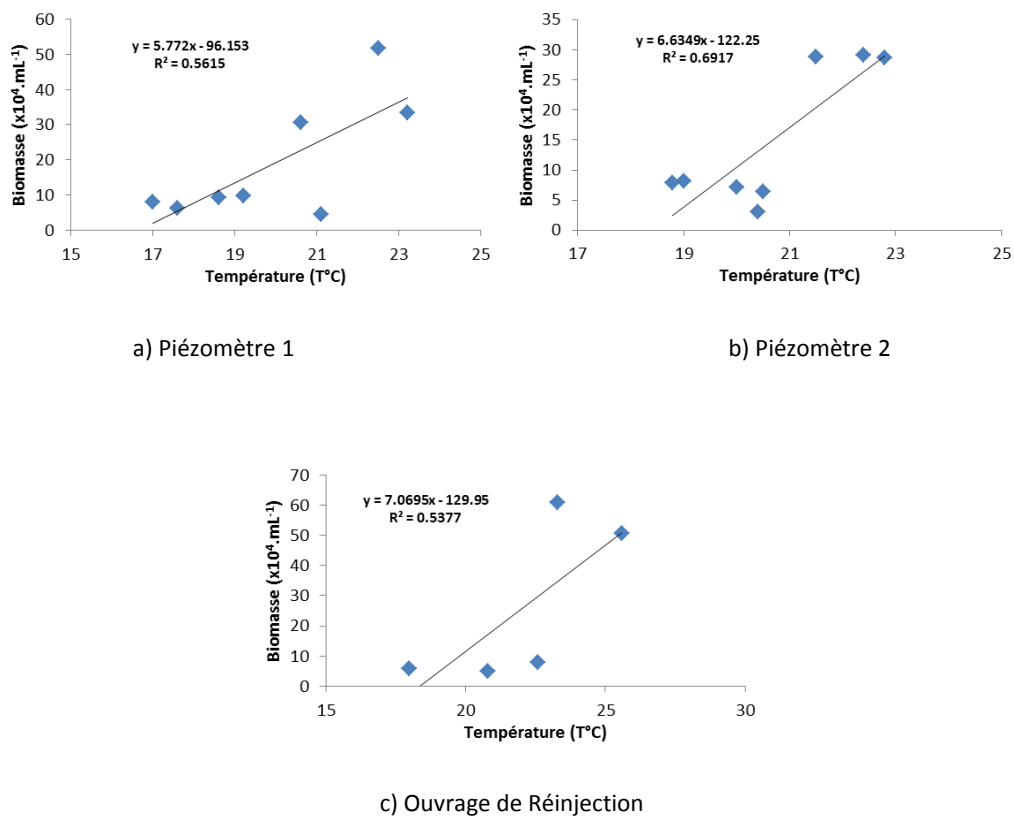


Figure 92 : Corrélation entre température de prélèvement et biomasse bactérienne totale ; les coefficients de corrélations ont été mentionnés à titre indicatif.

6.1.2 Germes d'intérêt sanitaire

Sur l'ensemble des mesures effectuées durant la période d'investigation (195 analyses), seulement trois révèlent la trace de germes potentiellement pathogènes en quantité détectable. Ces observations sont répertoriées dans le tableau 18.

Tableau 18 : Synthèse des points de mesure révélant la présence d'agents potentiellement infectieux.

Agents	Points de mesure	Quantité (UFC*/mL)	Date
Coliformes	P4	1	Juin 2011
	Ouvrage de réinjection	15	Octobre 2011
Entérocoques	P4	2	Juillet 2011

* UFC = Unité formant colonie

Compte tenu du fait que la nappe présente une qualité microbiologique globalement satisfaisante sur le plan sanitaire, c'est-à-dire quasiment exempte d'agents pathogènes, il n'a pas été possible d'observer une évolution des indicateurs d'ordre sanitaire avec la température.

Ces observations rejoignent les conclusions des travaux menés par Lupe et Renaud (2006) à la demande du Grand Lyon. Une série de prélèvements, répartis sur l'ensemble du territoire de l'agglomération entre des niveaux chauds (température > 16,5 °C) et froids (température < 16,5°C), a ainsi été effectuée. Les résultats ne montrent aucune corrélation entre les niveaux de température et la présence des différents paramètres suivis (coliformes totaux, coliformes thermotolérants, streptocoques fécaux, staphylocoques, salmonelles, shigelles, légionnelles, etc).

6.2 Suivi de l'évolution de l'activité bactérienne

Cette activité est évaluée en suivant la réduction du 2 (p-iodo-phenyl)-3-(p-nitrophenyl)-5-phenyl tetrazolium chloride (INT) en INT-Formazan, au niveau des eaux souterraines prélevées à l'issue de chaque campagne. Les mesures ont été effectuées en veillant à respecter le même temps de stockage des échantillons entre chaque campagne (3 jours) de façon à pouvoir autoriser l'inter-comparaison des résultats (Stenberg *et al.*, 1998). Les résultats obtenus sur l'ensemble de la période d'étude, en fonction des différents points d'échantillonnages, sont reportés sur la figure 93.

L'activité des micro-organismes est significativement plus élevée (test de Mann & Whitney au seuil de 5 %) au niveau des piézomètres impactés qu'au niveau des piézomètres situés dans la zone peu impactée.

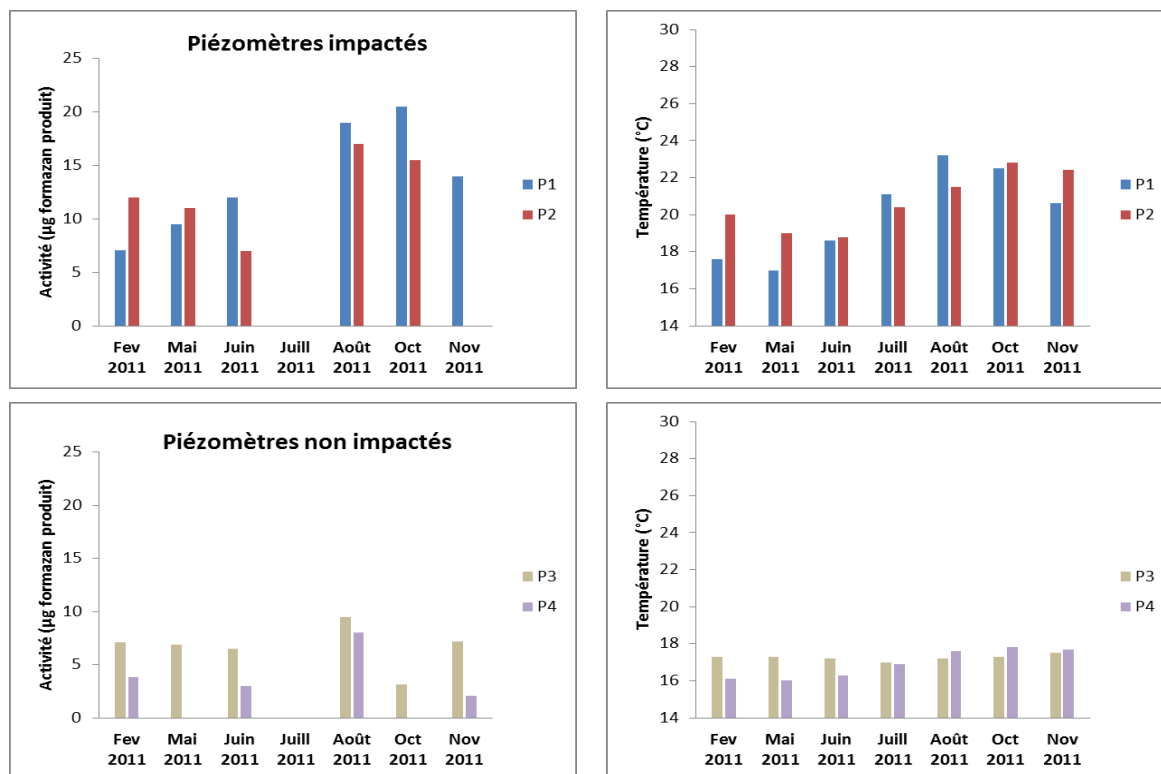


Figure 93 : Evolution de l'activité bactérienne et des températures de prélèvements correspondantes au cours de la période d'étude.

Afin d'évaluer plus finement le rôle de la température, une analyse en composante principale a été mise en œuvre en intégrant les mesures d'activités aux différents descripteurs biologique (biomasse) et physico-chimique (COT, température). Le résultat est présenté en figure 94. Il ressort que les mesures d'activités bactériennes sont positivement corrélées sur l'axe 1 avec la température de l'eau ainsi que, dans une certaine mesure, avec la biomasse totale. En revanche, l'activité semble peu influencée par la concentration en carbone organique total présente dans les eaux. Cette dernière observation est quelque peu surprenante puisque la matière organique joue un rôle clé dans le métabolisme bactérien. Il est donc fort probable que la fraction organique présente dans les eaux soit composée de substances complexes faiblement biodégradables dans le laps de temps nécessaire pour effectuer les mesures ou que les ressources nutritives soit limitantes.

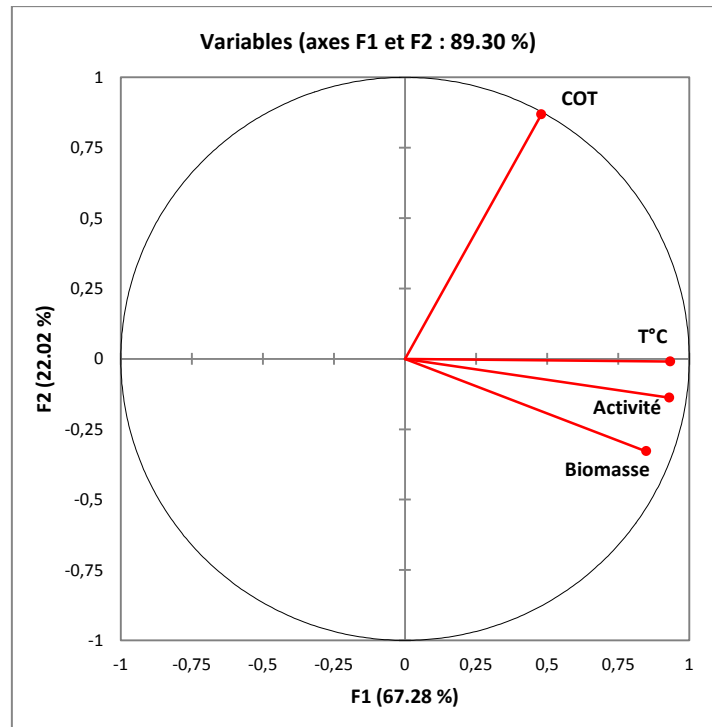


Figure 94 : Analyse en composantes principales (ACP) des mesures des activités biologiques couplées aux mesures de biomasse totale, de température et de carbone organique total.

6.3 Minéralisation de substrats carbonés

Le suivi de la minéralisation de différents substrats carbonés a été effectué à l'aide de microplaques commerciales EcoPlates™ (BIOLOG). Les plaques ont été inoculées directement avec l'eau de la nappe puis mises à incuber en duplicata à différentes températures. Un lot témoin a également été réalisé en utilisant de l'eau du site filtrée à 0,2 μm . Les mesures de minéralisations globales en fonction des différentes températures d'incubation sont présentées sur la figure 95 ci-dessous. La figure 96 présente quant à elle, un exemple de suivi cinétique de la minéralisation d'un des 31 substrats.

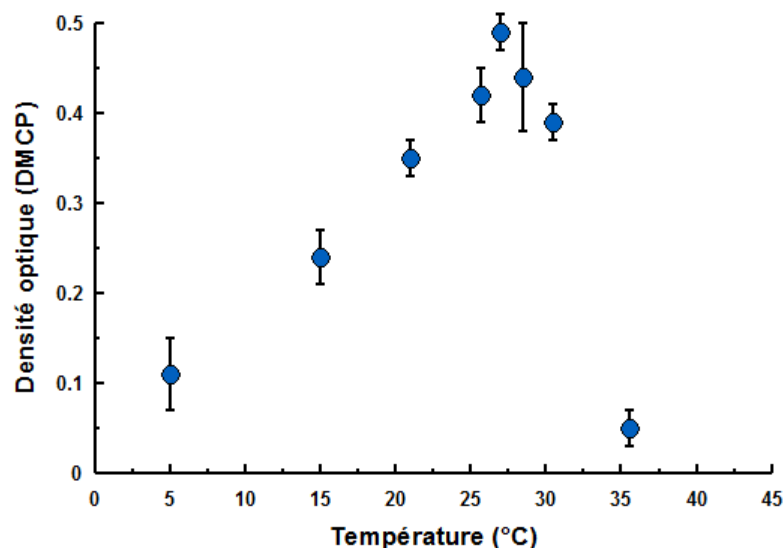


Figure 95 : Développement moyen de la coloration des puits en fonction de la température à l'issue d'une période de 120 h d'incubation

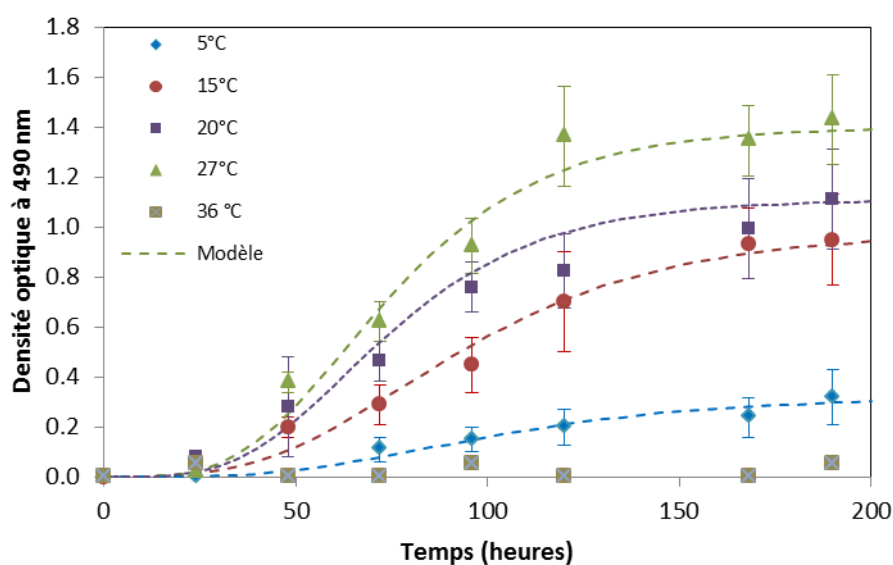


Figure 96 : Cinétique de minéralisation de l'acide D-galacturonique en fonction de la température.

Le modèle empirique Gompertz a été utilisé pour tirer un maximum d'informations sur les cinétiques de minéralisation (paramètres cinétiques ; Tableau 19).

Les interprétations de ces résultats sont semblables à celles développées dans le chapitre II. Par conséquent, le lecteur est invité à s'y reporter pour éviter toute redondance dans le contenu.

En quelques mots, on constate que l'élévation de la température se traduit par (i) une minéralisation plus importante du substrat en fin d'incubation (paramètre cinétique A), par (ii) un accroissement de la vitesse de dégradation (paramètre μ_m) et (iii), par une diminution du temps de latence qui marque le début de la phase dégradation (paramètre cinétique λ). L'optimum en température semble par ailleurs se situer aux alentours de 27°C (Figure 95).

Tableau 19 : Paramètres cinétiques d'ajustement du modèle. Avec A=absorbance moyenne maximale dans les puits, μ_m = vitesse maximale de développement de la coloration et λ = temps de latence

	5 °C	15 °C	20 °C	27 °C
A	0.32	0.85	1.1	1.4
μ_m	0.008	0.026	0.04	0.05
λ	45	40	35	35

Les valeurs de Q_{10} obtenue dans la gamme de température comprise entre 5 et 28 °C sont reportées dans le tableau 20. Ces valeurs sont en accord avec les observations habituellement reportées dans la littérature, qui révèlent que les vitesses de dégradation de matière organique augmentent, au sein de la gamme physiologique, d'un facteur voisin de 2 par tranche de 10°C (Katterer *et al.*, 1998).

Tableau 20 : Valeurs du Q_{10} en fonction de la gamme de température concernée.

Gamme de T°C	Q_{10}
5-15	2.1
15-25	1.7
15-28	1.8

6.4 Suivi de la diversité bactérienne

L'évaluation de la diversité bactérienne (identification des différentes souches en présence) a été réalisée sur la base d'une approche CE-SSCP qui permet de s'affranchir des méthodes culturales réputées pour le manque de représentativité dans des écosystèmes naturels comme les aquifères (Amann, *et al.*, 1995).

La reproductibilité des profils de diversité a été vérifiée sur des prélèvements effectués en duplicata pour les premières campagnes (Janvier 2010 et Février 2011) sur l'ensemble des

piézomètres de suivi (P1, P2, P3, P4). Les empreintes génétiques obtenues révèlent une haute reproductibilité et le protocole mis en œuvre sera considéré comme robuste pour la poursuite des campagnes d'échantillonnages.

6.4.1 Évolution de la structure des communautés

✓ Structuration spatiale

Les résultats montrent en premier lieu une certaine variabilité spatiale dans les empreintes génétiques obtenues au niveau des différents points d'échantillonnage, même en l'absence de tout rejet thermique dans la nappe. Quelques exemples comparatifs sont reportés dans la figure qui suit (Figure 97).

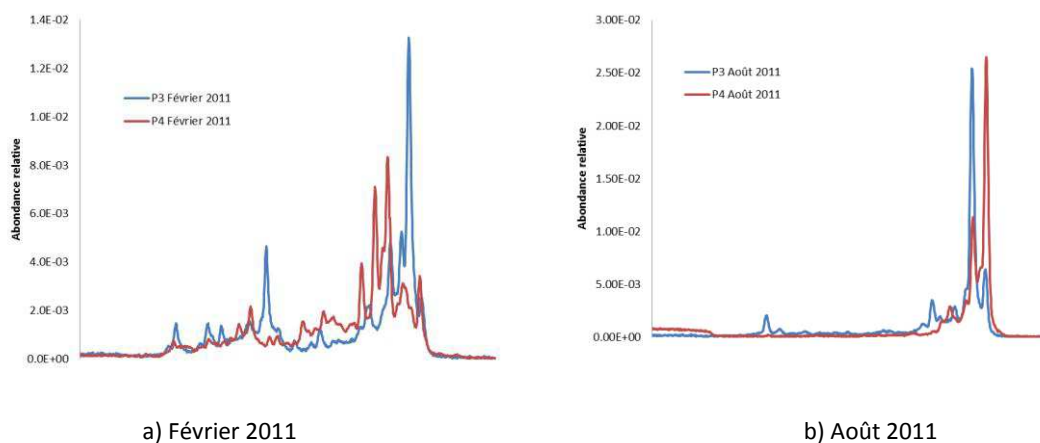


Figure 97 : Comparaison des profils de diversité obtenus sur les piézomètres non impactés.

Ces résultats sont confirmés par les analyses ACP sur matrice de diversité (Figure 98) qui dénotent d'une grande variabilité entre les différentes positions des points de mesures.

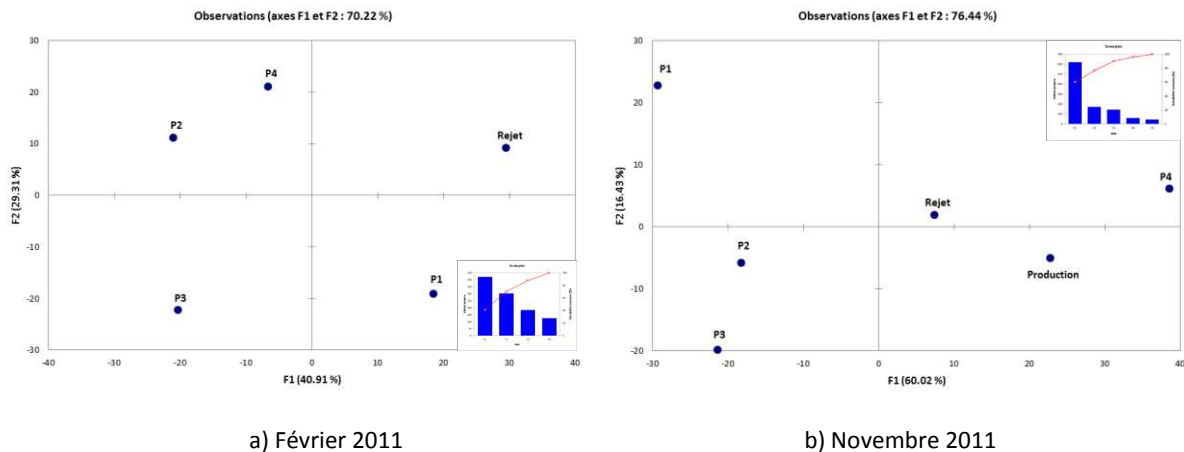


Figure 98 : ACP sur matrice de diversité sur les différents points de prélèvements en fonction des différentes périodes de l'année.

Différentes hypothèses sont ainsi avancées pour expliquer cette variabilité :

- l'hétérogénéité de l'aquifère au droit de chaque point d'accès à la nappe en termes de distribution (granulométrie) et de composition des particules. Cette non-uniformité de l'aquifère serait susceptible de créer des microenvironnements ou micro-niches susceptibles d'abriter des communautés aux caractéristiques distinctes ;
- la variabilité de la nature et de la fréquence d'arrivée des ressources nutritives qui sont des paramètres déterminants pour la croissance et le développement des microorganismes. Le flux de nutriment entrant est, en effet, fonction de nombreux facteurs, particulièrement en milieu urbain (imperméabilisation des surfaces, propriétés filtrantes de la zone non saturée, impluvium, topographie, étanchéité des ouvrages vis à vis de la surface, fuite de canalisations enterrées, ...).

✓ Structuration temporelle

En second lieu, les analyses effectuées à différentes époque de l'année ont mis en exergue des fluctuations temporelles de la dynamique des communautés microbienne de la nappe non corrélées à la température puisque observées même en l'absence de toute perturbation thermique induite par l'installation. Les figures 99 et 100 illustrent ces fluctuations temporelles.

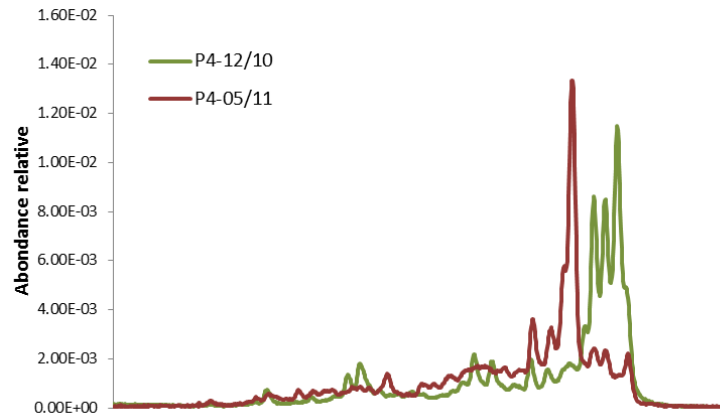


Figure 99 : Mise en évidence de l'évolution temporelle des profils de diversités obtenus sur le piézomètre P4 (non impacté)

Ces résultats reflètent une dynamique dans l'état d'équilibre des communautés entre les mois successifs de prélèvements. Elle peut s'expliquer par des ajustements de la composition des communautés en réponse, par exemple, aux oscillations du milieu (interaction avec le compartiment de surface et/ou entre espèces). Peu de travaux relatifs à ces phénomènes existent dans la littérature mais cette variabilité a toutefois déjà été observée dans les nappes d'eaux souterraines (Aizenberg-Gershtein *et al.*, 2012).

D'une manière générale, les résultats obtenus mettent clairement en évidence une variabilité spatio-temporelle non négligeable et rendent compte de la complexité à appréhender ce type de milieu naturel. Par ailleurs, ces résultats suggèrent clairement la limite d'un échantillonnage ponctuel comme référentiel absolu. Seule une approche basée sur des prélèvements à fréquence régulière semble adaptée pour le suivi de ce type de milieu.

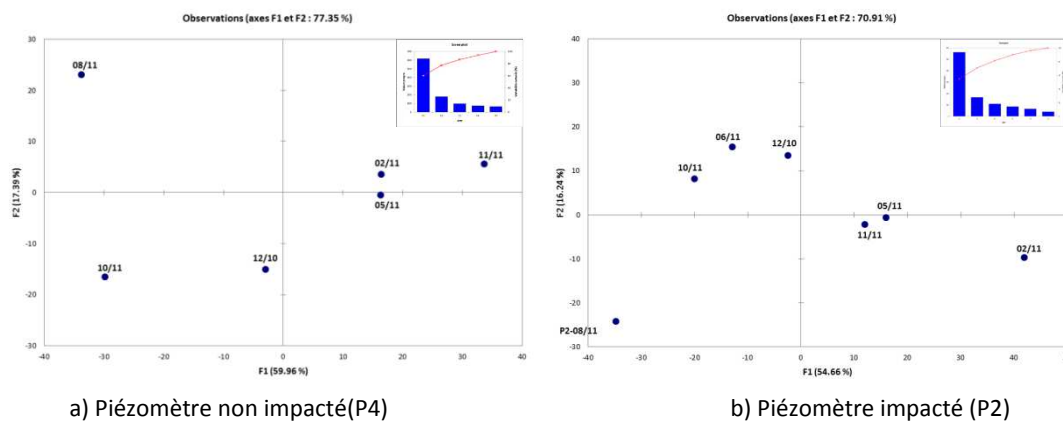


Figure 100 : ACP sur matrice de diversité sur les différents points de prélèvements en fonction des différentes périodes de l'année.

6.4.2 Evolution de la biodiversité

L'estimation de la biodiversité à partir des empreintes moléculaires a été effectuée en utilisant l'indice non paramétrique de Simpson (Simpson, 1949), calculé selon la relation suivante :

$$D = -\log \sum_{i=1}^n a_i^2 \quad (\text{IV.2})$$

Avec a_i : aire relative du pic i au sein des n pics détectés

Même si le calcul d'indices à partir d'empreintes moléculaires demeure délicat (Bent et Forney 2008), en raison de la méconnaissance de la richesse et de la distribution réelles de l'échantillon (phénomènes de co-migration qui dissimulent les espèces minoritaires), l'indice de Simpson reste couramment utilisé en écologie et semble le plus adapté et pertinent dans le cadre de cette étude (Michelland *et al.*, 2009).

Les figures 101 et 102 illustrent les indices de diversité (i) calculés pour chacune des campagnes de mesure et, (ii) synthétisés sur l'ensemble de la période d'étude. Pour chacune de ces représentations, la distinction entre zone impactée et non impactée a été proposée.

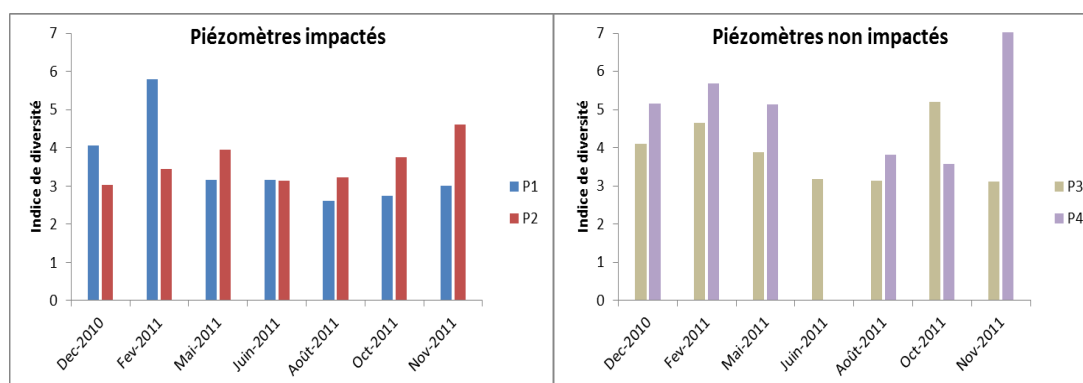


Figure 101 : Représentation des indices de biodiversité calculés selon les points de prélèvement pour chaque campagne de mesure.

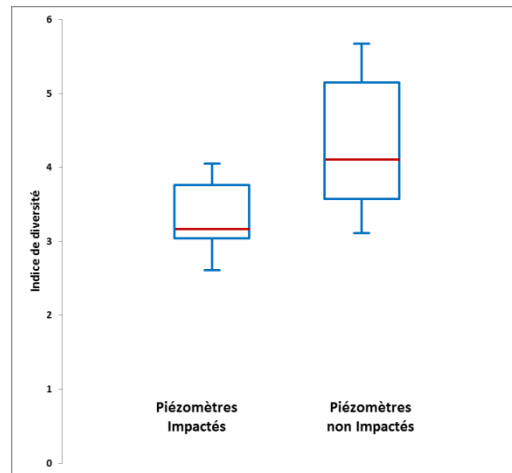


Figure 102 : Boîte de Tukey (Boxplot) représentant les indices de diversités calculés sur l'ensemble de la période d'étude pour les piézomètres impactés (P1, P2) et les piézomètres non impactés (P3, P4). La partie centrale de cette représentation (rectangulaire) inclut 50 % de la distribution, la médiane étant figurée en rouge. Les frontières hautes et basses de part et d'autre de la partie centrale délimitent les valeurs dites « adjacentes », au-delà desquelles les valeurs sont considérées comme atypiques ou exceptionnelles.

Les résultats obtenus soulignent une certaine hétérogénéité en ce qui concerne (i) la distribution des indices au cours du temps au sein de chacune des zones (impactée et non impactée) et (ii) et les valeurs globales de diversité entre ces deux zones d'étude.

Des investigations plus approfondies confirment que la zone non impactée par l'installation géothermique détient une diversité globale (à l'échelle d'une année) significativement plus élevée que la zone impactée ($p < 0,05$, test de Mann & Whitney sur le rang des valeurs).

Une corrélation négative a même pu être mise en évidence entre les indices de diversité et la température pour le piézomètre 1 ainsi que le puits de réinjection ($p < 0,05$, corrélation sur les rangs de Spearman). Toutefois, la tendance semble être inversée pour le piézomètre 2, même si aucune relation statistiquement significative n'a pu être établie.

L'évolution des indices de diversité en fonction des températures de prélèvement pour les différents points d'accès à la nappe est reportée sur la figure 103 ci-dessous.

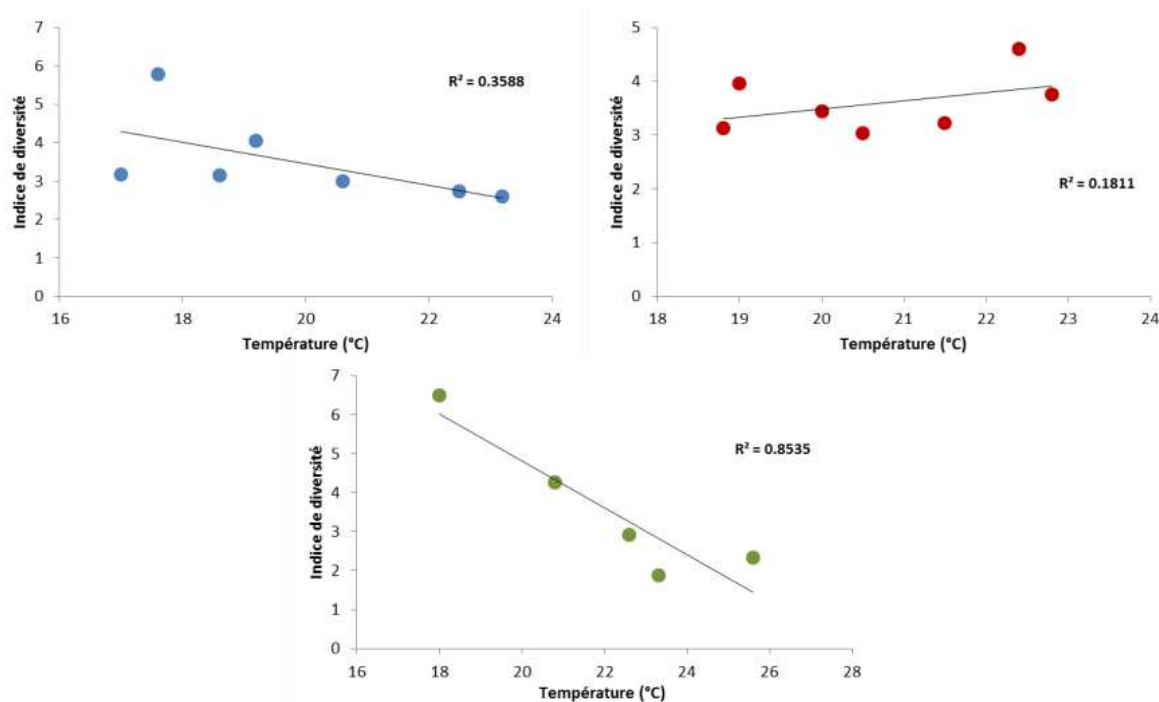


Figure 103 : Corrélation entre indices de diversité calculés et température.

6.4.3 Analyse des correspondances

Face à l'hétérogénéité des résultats obtenus ainsi que pour écarter les phénomènes de multicollinéarité, des analyses statistiques multidimensionnelles ont été menées dans le but d'identifier les causes responsables des changements intervenus dans l'écosystème, c'est à dire de déconvoluer les différents signaux environnementaux mesurés qui seraient susceptibles d'expliquer la variabilité des données.

Dans un premier temps, des analyses en composantes principales ont été effectuées sur le jeu de données physico-chimiques collecté durant la période d'investigations ainsi que sur les matrices de diversité des communautés bactériennes. Les résultats de ces analyses multivariées ne sont pas illustrés en raison du faible intérêt qu'elles présentent. En effet, aucune tendance significative ne se dégage au niveau des descripteurs physico-chimiques, notamment en ce qui concerne l'influence de la température (confirmée par des tests de corrélations ou régressions multiples). Les données de diversité sont, quant à elles, rendues relativement complexes en première approche du fait de la présence de variations spatio-temporelles.

Par la suite, une analyse de co-inertie a été mise en œuvre afin de visualiser les relations entre ces jeux de données expérimentales. Le test de Monte-Carlo, réalisé sur les deux matrices, est

significatif ($p < 0,001$), attestant de l'existence d'une co-structure entre les données physico-chimiques et la structure des communautés bactériennes. Les deux axes permettent d'observer près de 80% de l'inertie totale. Pour la clarté de l'illustration, les paramètres abiotiques, autre que la température, n'ont pas été projetées, bien que pris en compte dans l'analyse. Cette simplification s'explique par la très faible variabilité de ces paramètres au cours du temps, qui ne permet pas d'en déduire une quelconque incidence sur la structure des communautés bactériennes. A noter également que les données de diversité de la campagne de juillet ont été exclues de l'analyse puisque qu'elles sont sujettes à caution (quantité d'ADN extrait insuffisante, même après PCR, engendrant des bruits de fond important au niveau des électrophorégrammes).

Les résultats de l'analyse de co-inertie sont illustrés au niveau de la figure 104.

L'incidence de la température semble être perceptible au niveau de certains points de mesures qui ont été regroupés schématiquement sous forme d'ellipses. On distingue notamment :

- une corrélation positive au niveau de la structure des communautés à l'échelle des ouvrages impactés (P1, P2, Ouvrage de Rejet) durant la fin de la période estivale, coïncidant avec les niveaux de température les plus élevés au cours de la période d'investigation.
- une corrélation négative de la température sur la structure des peuplements, à l'échelle de certains ouvrages, durant la période de l'année où les températures enregistrées sont proches des minimas annuels.

Les résultats obtenus suggèrent ainsi que la température semble affectée, du moins ponctuellement, la structure des communautés bactériennes en présence au niveau de certains points de mesure, particulièrement impactés par les rejets thermiques.

Cependant, la variable température ne permet d'expliquer qu'une modification partielle et ponctuelle de la structure des communautés sur site et aucune autre corrélation majeure n'a pu être mise en évidence à partir des autres descripteurs abiotiques (données non montrées). Il semblerait donc, sur la base des données récoltées, que les variations saisonnières soient nettement plus structurantes au niveau de la composition des communautés que la variable température.

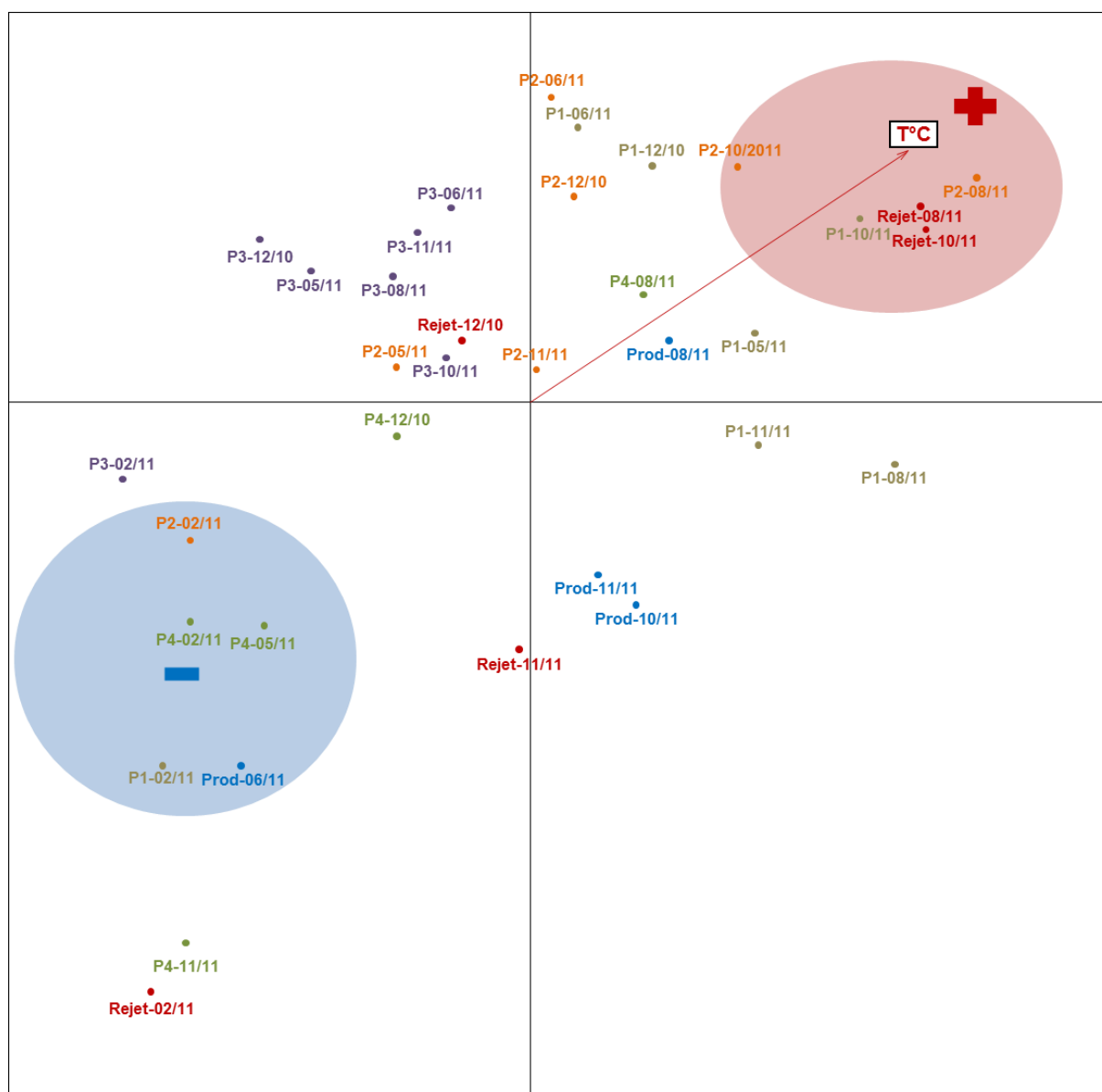


Figure 104 : Analyse de co-inertie des données physico-chimiques et des données de structure des communautés

7. Modélisation du transport réactif

L'impact d'un réchauffement de l'aquifère sur la géochimie a été évalué par la modélisation géochimique d'une injection d'eau à 30°C pendant une durée d'un an dans un réservoir initialement à 14°C.

7.1 Méthodologies et hypothèses

Le logiciel PHREEQC est utilisé pour simuler un écoulement 1D uniforme dans un milieu homogène. Une eau à 30°C est injectée dans une colonne fictive, initialement à 14°C, disposée horizontalement. Les eaux injectée et initiale sont de même composition et l'évolution géochimique est considérée par des équilibres thermodynamiques (approche à l'équilibre).

Le modèle hydrogéologique est très simplifié : il met en œuvre un écoulement 1D uniforme d'une vitesse de 0.7 m/jours; ce qui correspond à une perméabilité de $4 \cdot 10^{-3}$ m/s et un gradient de charge hydraulique de 1 ‰. Un transport advectif-dispersif est pris en compte avec une dispersivité de 20 mm. Pour la thermique, le facteur de retard en température, défini comme le rapport de la capacité calorifique de tout l'aquifère sur la capacité calorifique de l'eau de la porosité, est considéré égal à 2.86. Le coefficient de diffusion thermique est de $2.5 \cdot 10^{-6}$ m²/s.

Le modèle chimique consiste en une spéciation aqueuse correspondant à la moyenne des concentrations relevées dans les prélèvements *in situ*. Tout au long de la colonne, l'équilibre avec les minéraux du tableau 9 est respecté, ainsi qu'avec une phase gaz composé de 21% d'O₂ et de 2,5 % de CO₂. On fait l'hypothèse qu'aucun minéraux, ni aucune phase gaz, ne vient à disparaître au cours de la modélisation.

Tableau 21 : Assemblage minéralogique utilisé dans la modélisation transport réactif à l'échelle du site.

Nom	Formule
Quartz (alpha)	SiO ₂
Calcite	CaCO ₃
Dolomite (ordered)	CaMg(CO ₃) ₂
Microcline	KAlSi ₃ O ₈
Illite(IMt2)	(Na _{0.044} K _{0.762})(Si _{3.387} Al _{0.613})(Al _{1.427} Fe _{0.376} Mg _{0.241})O ₁₀ (OH) ₂

Le modèle prend en compte la sorption/désorption sur les argiles par échange cationique. Les données de sorption des cations (Na, K, Li, NH₄, Ca, Mg, Sr, Ba, Mn, Fe, Cu, Zn, Cd, Pb, Al) sont issues de plusieurs références compilées dans la base de données du LLNL (Lawrence Livermore National Laboratory) disponible avec le logiciel PHREEQC. La capacité d'échange cationique est fixée à la valeur de 0,32 eq/kgw obtenue à partir de la CEC mesurée (4 meq/100g) et le rapport liquide solide déduit de la porosité (considérée égale à 0,25).

L'impact d'un réchauffement de l'aquifère sur la géochimie est évalué par les calculs à l'équilibre thermodynamique à différentes températures. L'évolution des constantes d'équilibre avec la température sont prise en compte lorsque des données sont disponibles. La base de données renseigne l'évolution en température (1) des constantes de solubilité des phases minérales utilisées, (2) de quelques constantes de réaction de sorption sur l'échangeur cationique (réaction d'échange avec Na de K, Li, NH₄, Ca, Mg, Sr, Ba) et (3) la grande majorité des constantes de réactions en phase aqueuse (réactions acide-base, redox, de complexation). Néanmoins, l'ensemble de ces constantes évolue peu dans la gamme 10-30°C.

7.2 Résultats

Après un an d'injection le long d'une colonne de 200 mètres, on obtient les profils de température et de concentrations présentés sur la figure 105.

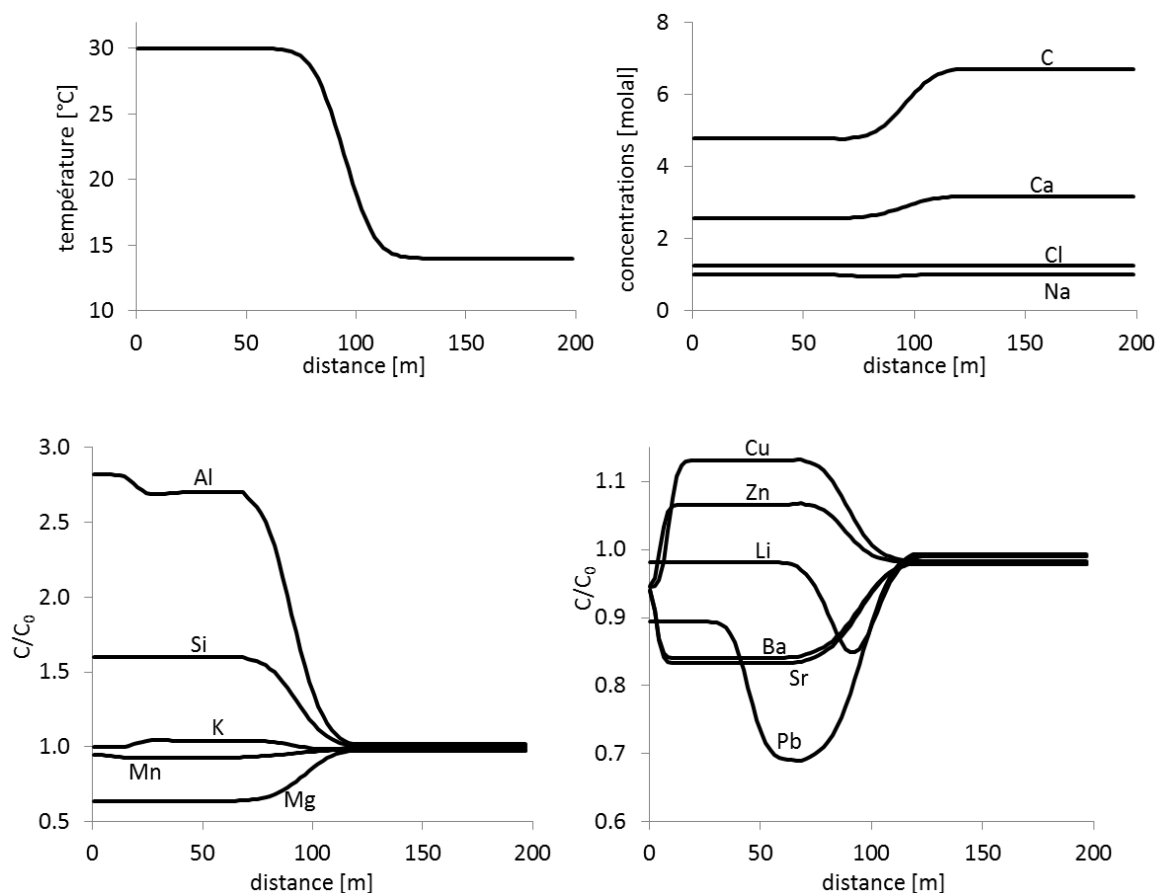


Figure 105 : Profils de température et de concentrations absolues (C en molal) ou relatives (rapportées à la concentration initiale C_0) pour différents éléments.

Le panache thermique présenté ici est à prendre avec précaution car calculé avec de fortes approximations concernant l'hydrologie et la thermique. Pour la plupart des constituants chimiques, la température fait faiblement varier les concentrations. Les plus fortes variations sont enregistrées pour l'aluminium et la silice. Mais la modélisation surestime vraisemblablement ces variations du fait de la prise en compte d'équilibres plutôt que de cinétiques pour les précipitations/dissolutions minérales. Les éléments traces, dont les augmentations de concentrations sont susceptibles de modifier la qualité de l'eau, varient faiblement. Ces variations sont en grande partie liées au processus de sorption/désorption sur les phases argileuses.

Cette modélisation tend à confirmer les observations de terrain qui ne montrent pas de variation géochimique significatives en lien avec le réchauffement de la nappe.

8. Conclusions

Dans le but de contribuer à évaluer l'impact physico-chimique et microbiologique des rejets thermiques à l'échelle d'un aquifère alluvial en milieu urbain, une approche multidisciplinaire a été mise en œuvre.

Après sélection, aménagement et équipements du site, une série de campagnes de prélèvements, sur 12 mois, a permis, à l'échelle d'un cycle hydrologique complet, de caractériser d'une part l'aire d'influence du panache thermique et d'autre part, les conséquences sur la qualité des eaux à l'aplomb et au voisinage du site.

L'examen des chroniques de température montre tout d'abord que les rejets thermiques modifient de façon importante le régime thermique de la nappe à l'aplomb du site, avec un effet cumulatif probable des formations géologiques, se traduisant par une augmentation thermique interannuelle. Cependant, cette zone d'influence semble être relativement limitée (50 m en amont et 150 m en aval du puits de rejet).

Le suivi des paramètres physico-chimiques ne fait pas apparaître de modifications sensibles, dans la gamme de température observée sur site.

La caractérisation et le suivi de l'évolution des espèces constitutives du compartiment bactérien ont été réalisées par une triple approche : (i) suivi de la biomasse totale, (ii) suivi de l'activité, et (iii) suivi de la structure et de la diversité des espèces résidentes.

Cette étude, basée sur un programme annuel de suivi, a tout d'abord fait ressortir la présence de variations saisonnières au niveau des paramètres étudiés, rendant ainsi particulièrement complexe l'analyse et l'interprétation des résultats. Par ailleurs, une influence significative des rejets thermiques a été décelée au niveau de la plupart des paramètres microbiologiques, (augmentation de l'activité bactérienne, influence ponctuelle sur la structure des communautés) considérés comme témoins sensibles de ces perturbations. Néanmoins, les phénomènes observés ne semblent pas entraver le bon fonctionnement de l'écosystème du moins, sur la base de l'approche déployée dans cette étude. Des investigations supplémentaires s'avèrent toutefois nécessaires pour appuyer ces propos.

Chapitre V :

**Approche à l'échelle d'une
sonde géothermique verticale
(BRGM, Orléans)**

Financée dans le cadre du projet CPER 2007-2013 Centre, la plateforme expérimentale pour les échangeurs géothermiques a été implantée en fin d'année 2008 sur le site orléanais du BRGM. Elle comporte différents types d'échangeurs géothermiques de référence, i.e., actuellement proposés aux particuliers pour le chauffage et la climatisation de maisons individuelles (capteurs verticaux et horizontaux), mais également des échangeurs de technologies plus innovantes (échangeurs géothermiques semi-compactes de types spiralés ou corbeille) introduits récemment sur le marché français. Initialement conçue à des fins d'étude des transferts de chaleur entre l'échangeur et le sous-sol environnant, une partie des équipements (sondes géothermiques verticales) a pu être mise à profit pour la première fois lors de cette thèse dans le but de suivre les interactions avec l'environnement souterrain.

1. Description du dispositif expérimental

1.1 Description des échangeurs verticaux

Le dispositif expérimental implanté dans le sous-sol comprend les éléments suivants (Figure 106) :

- **Trois sondes géothermiques verticales (S1, S2 et S3)**, d'une profondeur de 50 m (S2, S3) et de 100 m (S1), disposées à équidistances (10 m) les unes des autres pour former un triangle équilatéral. Deux technologies distinctes d'échangeur ont été testées pour ces sondes géothermiques (configuration double U, traditionnellement mise sur le marché, et configuration coaxiale 5 tubes (1 tube central et 4 périphériques) mais ne feront pas l'objet d'une description détaillée dans la présente étude.
- **Trois piézomètres de suivi (P1, P2 et P3)** associés à chacune des sondes, positionnés à une distance de 3 m. Ceux-ci ont été crépinés de manière à pouvoir accéder à la nappe au droit du site à différentes profondeurs et rendre ainsi compte des éventuelles perturbations. Les coupes techniques de ces ouvrages sont consultables en annexe 6.

1.2 Dispositif de régulation des puissances thermique échangées

La compréhension des échanges de chaleur dans le sous-sol passe par une maîtrise des conditions de l'essai. A cette fin, le dispositif expérimental est raccordé, en surface, à une

machinerie thermodynamique capable d'imposer et de réguler les puissances thermiques ou les niveaux de températures exigés par l'opérateur.

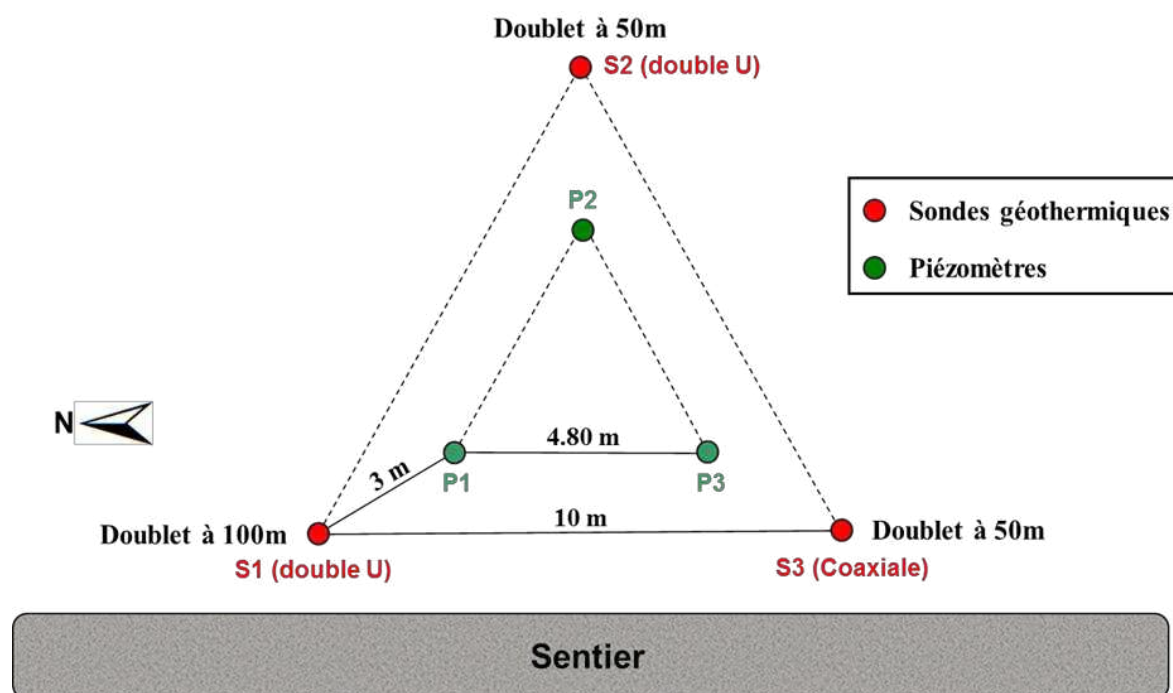


Figure 106 : Schéma d'implantation du dispositif expérimental incluant 3 sondes géothermiques verticales et 3 piézomètres de suivi



Figure 107 : Opération de forage au cœur du site orléanais du BRGM avec un carottage systématique des sédiments traversés

Le dispositif de régulation mis en œuvre est composé principalement :

- d'un groupe frigorifique/réchauffeurs électriques afin d'assurer la fourniture en chaud et en froid du dispositif suivant la saison, (en mode « été » ou en mode « hiver »). Un ballon tampon d'une capacité de 750 L assure, quant à lui, l'inertie thermique de la production.
- de pompes de circulation
- d'un système complexe de régulation dynamique (débitmètre, vanne 3 voies proportionnelle, sondes de température) permettant l'asservissement du système en fonction des consignes renseignées par l'opérateur.
- d'un système d'acquisition de données et d'archivage complété par des outils de pilotage à distance nécessaires à la supervision du fonctionnement du système.



Figure 108 : Machinerie thermodynamique de régulation en chaud et en froid des échangeurs géothermiques

1.3 Mesure du champ de température dans le sous-sol

Dans le but d'appréhender et de décrire finement le comportement thermique de la tranche de sous-sol affectée par les sollicitations thermiques, une technologie innovante de mesure de température « répartie » sur fibres optiques a été mise en œuvre. Autrefois réservés à un segment étroit de marché (réseaux de télécommunications notamment), les capteurs à fibre optique ont vu leurs champs d'application s'élargir considérablement ces dernières années dans des domaines variés tels que le génie civil (mesure de contraintes), l'industrie, les

transports ou encore la médecine et l'énergie (installations pétrolifères et gazières notamment). Dans le cas de la présente étude, la mesure par fibre optique permet de bénéficier d'une excellente résolution spatiale des mesures (de l'ordre du mètre) tout en s'affranchissant des contraintes inhérentes aux techniques de mesures ponctuelles traditionnelles (câblage, encombrement,...). Afin de mieux cerner la particularité et l'intérêt de la mesure, le principe physique de fonctionnement est brièvement explicité.

1.3.1 Principe de la mesure

La mesure de température « répartie » sur fibre optique est fondée sur le principe de réflectométrie, en exploitant le phénomène physique de diffusion Raman. Dans le principe, une source d'émission laser envoie, au cœur de la fibre, des impulsions lumineuses courtes et de forte puissance. Lors de la propagation du faisceau incident, les photons vont interagir avec les molécules de silice (élément sensible) de la fibre selon deux modes de diffusion distincts :

- Diffusion élastique : interaction au cours de laquelle l'énergie cinétique totale est conservée, seul un changement de direction des ondes s'opère. Il s'agit des raies Rayleigh, représentées sur la figure 109 a), qui correspondent à la longueur d'onde du faisceau incident.

- Diffusion inélastique : interaction au cours de laquelle l'énergie du rayonnement diffusé diffère légèrement de celle du rayonnement incident. On parle ainsi de « raies Stokes » lorsque le photon cède une partie de son énergie à la molécule de silice (diminution de la fréquence du photon et augmentation de sa longueur d'onde) et de raies anti-Stokes lorsque le rayonnement diffusé gagne en énergie (augmentation de la fréquence et diminution de la longueur d'onde).

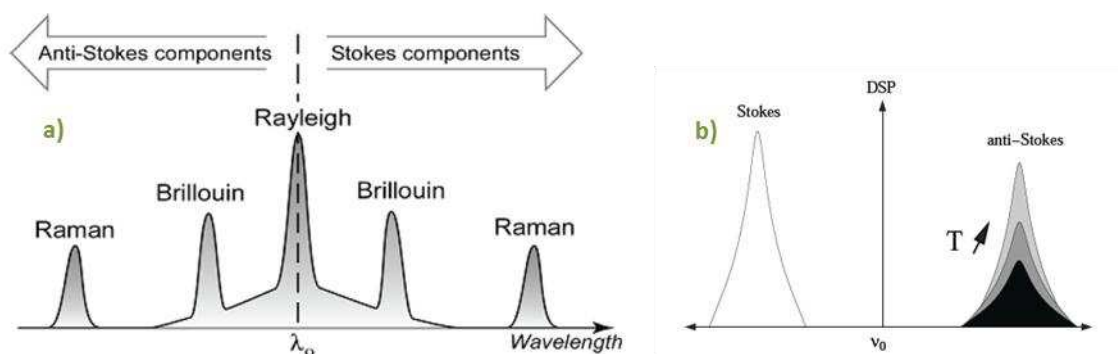


Figure 109 : a) Spectre de diffusion dans la fibre optique traversée par une longueur d'onde λ_0 et, b) Evolution du spectre Raman avec la température.

Comme la température n'influe que sur l'amplitude l'onde rétrodiffusée (Figure 109 b), le rapport des intensités entre les 2 raies Raman, effectuées en chaque point du profil, permet d'en déduire la mesure de température. Ainsi, chaque mètre de fibre optique devient un capteur de température et permet l'acquisition de profil de température de très bonne résolution.

1.3.2 Mise en œuvre de l'instrumentation

L'ensemble des 6 forages (3 sondes géothermiques, 3 piézomètres) ont été ainsi équipés, lors de leurs mises en place, de câbles optiques disposés le long des équipements (Figures 10 et 11) de façon à obtenir le profil de température dans ces forages le long de la profondeur. Ces fibres sont reliées en surface à un système optoélectronique permettant d'analyser les signaux optiques. Il s'agit d'un réflectomètre à effet Raman de type DTS-Sentinel (Distributed Temperature Sensor).

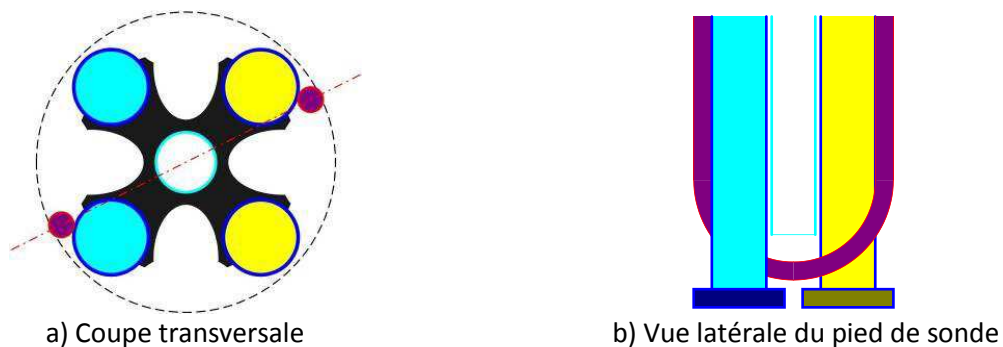


Figure 110 : Positionnement des fibres optiques dans une sonde géothermique à 4 tubes



Figure 111 : Vue du pied de la sonde géothermique coaxiale (5 tubes) équipée de sa fibre optique de mesure de température

La coupe géologique N-S (Figure 113) effectuée à travers la région Centre rend compte de l'extension et de l'épaisseur de cette formation qui affleure dans la partie septentrionale de la région et qui se recouvre d'un manteau argilo-sableux burdigalienne d'origine fluviale sous la Sologne et la forêt d'Orléans.

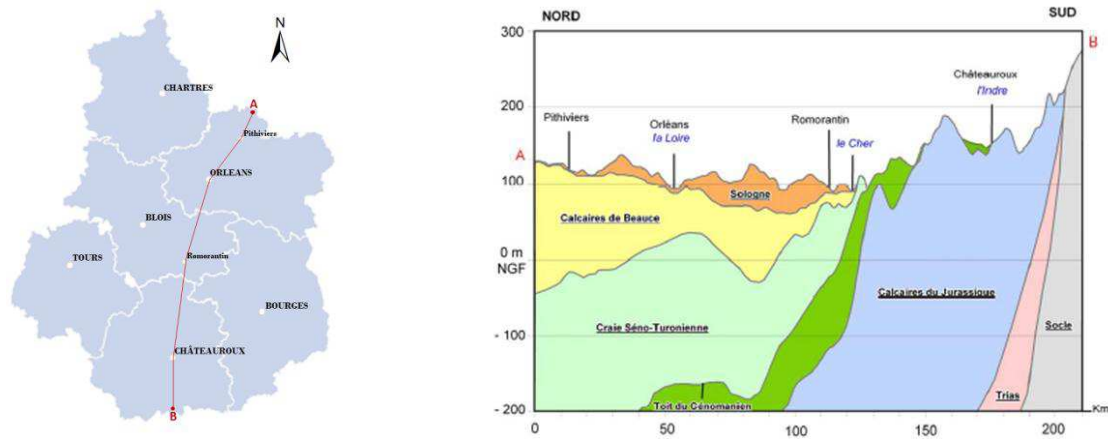


Figure 113 : Coupe géologique simplifiée de la région Centre selon le transect A-B (nord-sud)

Reposant en discordance sur le toit de la craie d'âge Céno-mano-Turonien, les formations constitutives du système de Beauce sont d'âge éocène à miocène inférieur (stamptien - aquitanien). Les dépôts tantôt carbonatés argileux tantôt sablo-argileux correspondent à des paléo-environnement en grande partie lacustres. La formation est complexe et composée d'une juxtaposition et d'une superposition de plusieurs types de faciès dont il serait vain de les décrire de façon exhaustive. Néanmoins, la série sédimentaire la plus fréquemment rencontrée se subdivise en 3 sous étages principaux qui sont, depuis le sommet de la séquence stratigraphique :

- Calcaire de Beauce supérieur : représente l'horizon supérieur du réservoir, et présente des faciès diversifiés, allant des calcaires fins homogènes, travertineux, vacuolaires, généralement silicifiés (meulière) intercalés par des niveaux marneux.
- Molasse du Gâtinais : caractérisée par une assise sableuse et assez compacte. On lui attribue parfois un rôle d'écran hydraulique entre les 2 systèmes aquifères de Beauce. Cette formation, très présente au nord d'Orléans, voit son épaisseur très réduite dans le sud de la Loire.
- Calcaire de Beau inférieur (ou Calcaire d'Etampes) : calcaires généralement durs avec quelques bancs de meulière et passages oolithiques, rubanés ou marneux.

Fragmentée et fissurée, la formation de Beauce est le siège de fréquents phénomènes karstiques : dolines, fontis, gouffres, et cavités souterraines (Figure 114).



Figure 114 : Fontis observé sur la commune de Jargeau (Géosciences, BRGM), correspondant à l'effondrement des terrains surmontant la voûte d'une cavité karstique

2.2 Contexte géologique et hydrogéologique local

2.2.1 Cadre géologique

La zone d'étude est située à la limite septentrionale du bassin de Sologne, et en bordure (rive gauche) de la plaine alluviale du Val d'Orléans (Figure 115), correspondant à un vaste système fluvio-karstique enserré entre les 2 versants que le fleuve a creusé au fil de son évolution.

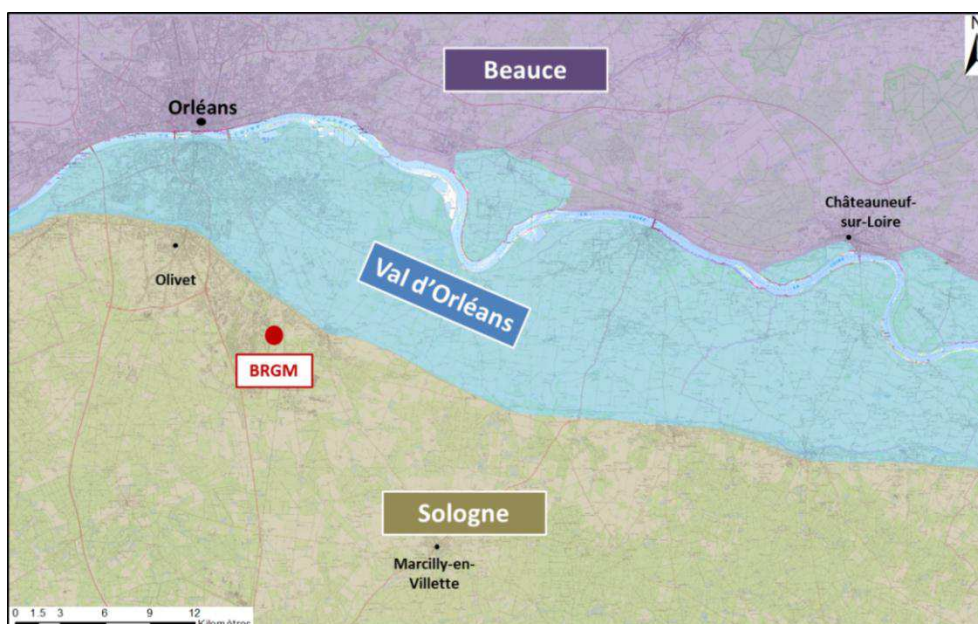


Figure 115 : Plan de localisation du site du BRGM par rapport aux grandes entités géologiques de la région

Cet hydrosystème est caractérisé par une interaction étroite entre les eaux de surface et les calcaires lacustres de la formation de Beauce via un réseau de drainage karstique complexe, à l'origine de multiples phénomènes de pertes/émergences.

La réalisation des ouvrages de la plateforme Géothermie sur le site du BRGM a permis d'établir, au droit du site, une reconnaissance des terrains afin d'esquisser la géologie de l'aquifère et ainsi obtenir des informations précises sur sa lithologie, son épaisseur ainsi que ses limites. A cette fin un sondage carotté de 100m de profondeur (Figure 107), transformé par la suite en sonde géothermique (S1), a permis tout d'abord d'établir un examen précis de la succession lithostratigraphique. On rencontre ainsi successivement depuis la surface (Figure 116) :

✓ **Formations quaternaires** : constituées d'un mélange de sable, galets et argile, sur une épaisseur d'environ 10 m, correspondant à des alluvions anciennes

✓ **Formations de Sologne**, burdigaliennes : composées essentiellement de sables et d'argiles verdâtres ou beiges, dont l'épaisseur est voisine de 4 m.

✓ **Formations de Beauce** : l'épaisse série du système de Beauce se rencontre dès 14 mètres de profondeur et se composent des unités suivantes :

- *Formations aquitaniennes*

- faciès marneux : observé sur une quinzaine de mètres de puissance, ce faciès est principalement constitué de marnes vert clair avec parfois présence de nodules de calcaires plus indurés.

- calcaires de Pithiviers : caractérisés par une assise compacte, intensément karstifiés avec présences de bancs meulière, conformément aux descriptions traditionnelles.

- molasse du Gâtinais : déduite de la transition de faciès entre le calcaire de Pithiviers et le calcaire d'Etampes. D'une épaisseur réduite (~1 m),

- *Formations stampiennes ou calcaires d'Etampes* : ce faciès correspond à un calcaire plus ou moins massif, beige à gris, comportant des niveaux argileux, sur une épaisseur de 35 m.

✓ **Substratum éocène** (Cénomaniens-Turonien) : calcaires ou argiles dans la partie supérieure.

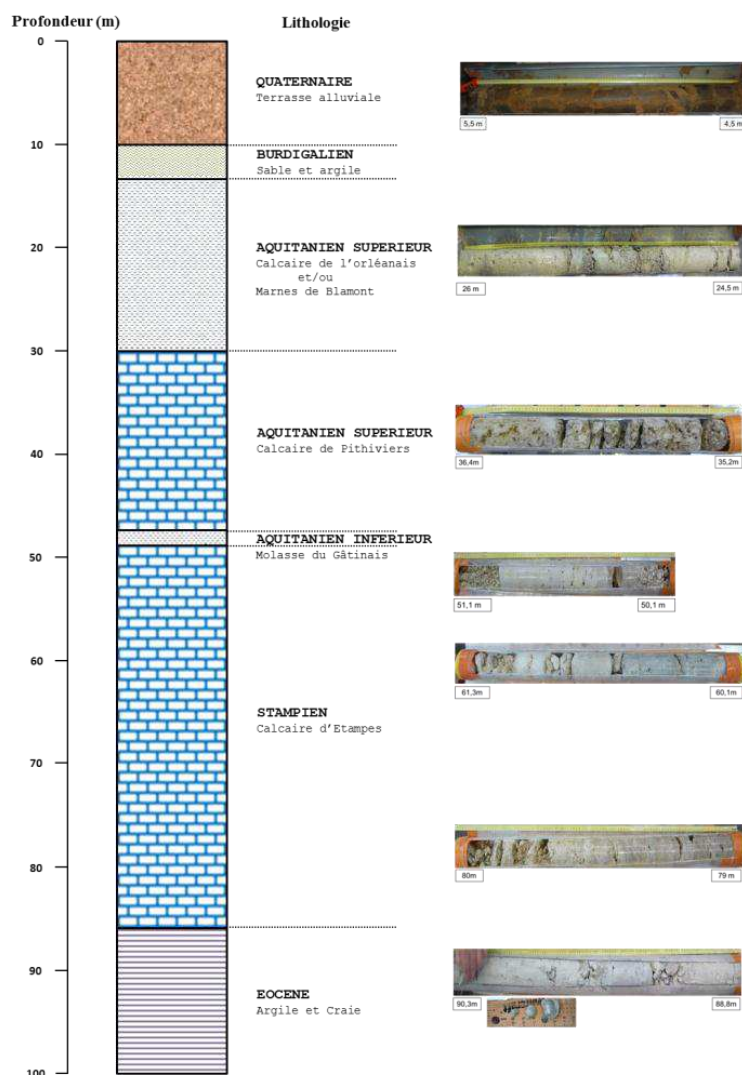


Figure 116 : Coupe géologique simplifiée des terrains traversés illustrée par quelques portions de terrains correspondant aux principales formations rencontrées (carottes)

2.2.2 Hydrogéologie

Au droit du site pilote, deux nappes ont été rencontrées selon une géométrie conforme à celle connue dans le secteur environnant :

- Nappe superficielle perchée : de faible profondeur et d'épaisseur réduite (quelques mètres), elle est contenue dans les sables et les alluvions anciennes et repose sur les sables et argiles du Burdigalien sous-jacent, assurant ainsi le rôle de substratum pour cet aquifère superficiel. La surface piézométrique voire la présence de cette nappe est largement tributaire du régime des précipitations et ne présente guère d'intérêt dans le cadre de cette étude.

- Nappe des calcaires de Beauce : Le réservoir comporte deux unités carbonatées, les calcaires de Pithiviers et les calcaires d'Etampes séparés entre elles par la molasse du

Gâtinais. La très faible épaisseur de la molasse relevée semble insuffisante pour assurer une séparation hydraulique entre ces deux entités. Cette hypothèse est confirmée par les niveaux piézométriques très proche, voire identique entre ces deux formations. Le complexe aquifère se trouve également isolé du compartiment de surface par les formations détritiques superficielles du quaternaire, ainsi que des niveaux marneux, conférant ainsi une protection vis-à-vis des pollutions accidentelles de surface.

Piézométrie :

Le réseau d'écoulement global de la nappe est identifié à partir des lignes équipotentiels correspondant à l'état piézométrique de hautes eaux de 2005 (Figure 17). La charge piézométrique est comprise entre 92,0 et 90,5 m NGF. Les variations observées à l'échelle d'un point de mesure, dans la période comprise entre 2009 et 2012, sont de l'ordre de 0,7 m. L'écoulement s'effectue, au droit du site, en direction de la Loire (écoulement d'axe NW-SE), qui constitue l'axe de drainage principal. Les charges hydrauliques calculées dans la traversée de la carte montrent un gradient de charge (pente de la surface piézométrique) relativement faible, avoisinant les 3‰, traduisant ainsi une perméabilité importante des formations.

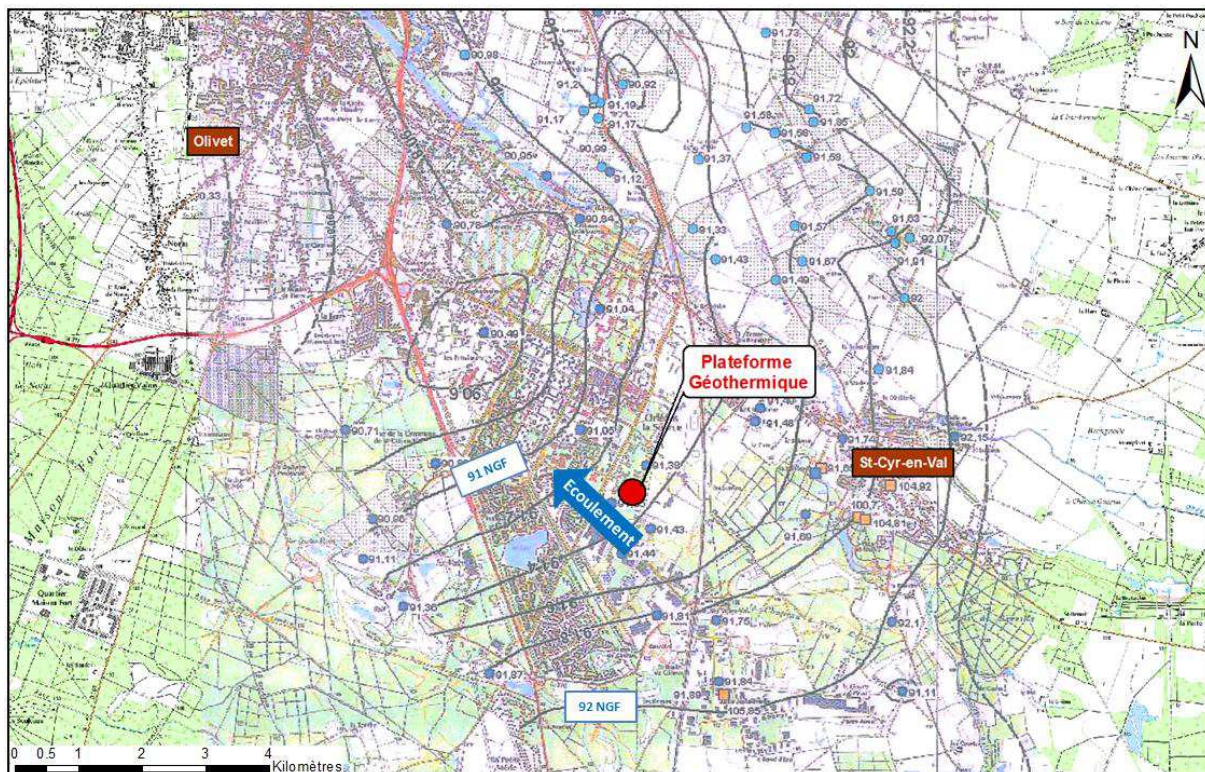


Figure 117 : Carte piézométrique de la nappe des calcaires de Beauce en période de hautes eaux (avril 2005) (données sources communiquées par la DREAL)

Paramètres hydrodynamiques :

Faute de données spécifiques acquises au niveau du site pilote (pompage d'essai, test d'injectivité), les valeurs de transmissivité ont été extraites d'études antérieures (Rousselot, 1992 ; Gigout et Desprez, 1971) et ont permis d'en déduire, en fonction des caractéristiques locales (épaisseur des formations), les valeurs de conductivité hydraulique horizontales des niveaux producteurs. Ces valeurs sont répertoriées dans le tableau 22 ci-dessous :

Tableau 22 : Tableau récapitulatif des transmissivités des formations géologiques concernées

Niveau géologique	Transmissivité (m.s^{-2})	Epaisseur local (m)	Perméabilité moyenne (m.s^{-1})
<i>Calcaires de Pithiviers</i>	1.10^{-2} à 1.10^{-1}	17	$3.2.10^{-3}$
<i>Calcaires d'Etampes</i>	1.10^{-2} à 1.10^{-1}	47	$1.2.10^{-3}$

Les valeurs de perméabilité moyenne, hors chenaux karstiques, sont élevées et sont comprises entre $1,2$ et $3,2.10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$. On en déduit les vitesses globales d'écoulement de l'eau (vitesse de Darcy) comprises entre 3 et 8.10^{-2} m/jrs (soit entre $3,47.10^{-7}$ et $9,26.10^{-7} \text{ m.s}^{-1}$). En considérant une porosité moyenne de 10%, habituellement reportée dans les documents existants au niveau du secteur (Rousselot, 1992), on obtient une vitesse réelle de propagation de l'eau de l'ordre de 200 m par an.

3. Caractérisations minéralogiques et hydrogéochimiques

3.1 Caractérisation de l'assemblage minéralogique des sédiments

3.1.1 Analyses chimiques globales

L'analyse chimique globale de chaque échantillon a été réalisée par spectrométrie de fluorescence X. Les compositions chimiques obtenues, exprimées en % massique, sont reportées en fonction de la profondeur sur l'illustration ci-dessous (Tableau 23). L'analyse de la composition chimique globale des différents échantillons le long de la séquence verticale laisse entrevoir une faible variabilité chimique. L'ensemble des échantillons affichent, en effet, de fortes concentrations en calcium, exprimé ici sous forme oxydé (CaO). Les

autres éléments sont présents à l'état de traces, avec des concentrations qui n'excèdent guère le seuil de 1%, excepté toutefois pour les teneurs en silice.

Tableau 23 : Analyses comparatives des compositions chimiques obtenues par spectrométrie de fluorescence X en fonction de la profondeur.

		Al ₂ O ₃	CaO	Fe ₂ O ₃ t	K ₂ O	MgO	MnO	Na ₂ O	P ₂ O ₅	SiO ₂	TiO ₂	Carbone total	Perte au feu
	LQ	0.2	0.1	0.05	0.05	0.2	0.02	0.2	0.05	0.2	0.05	0.01	0.1
	Unité	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%
Profondeur	20 m	0.2	55.0	0.09	< LQ	0.7	0.04	< LQ	< LQ	1.0	< LQ	12.20	43.1
	27.5 m	0.4	52.1	0.13	< LQ	1.4	0.05	< LQ	< LQ	2.4	< LQ	11.40	42.8
	34.9 m	0.3	54.0	0.19	< LQ	0.9	0.04	< LQ	< LQ	1.5	< LQ	12.00	43.2
	39 m	0.2	53.3	0.10	< LQ	0.9	0.04	< LQ	< LQ	0.5	< LQ	12.30	43.7
	43.9 m	0.6	52.0	0.52	0.07	0.9	0.05	< LQ	< LQ	3.6	< LQ	11.70	42.2
	50 m	0.2	56.0	0.10	< LQ	0.5	0.04	< LQ	< LQ	0.6	< LQ	12.30	43.7
	67 m	0.5	53.0	0.25	0.05	0.8	0.03	< LQ	< LQ	1.2	< LQ	11.90	42.8
	85 m	0.3	54.0	0.08	< LQ	1.1	0.04	< LQ	< LQ	1.7	< LQ	12.00	42.9

3.1.2 Analyses minéralogiques

La nature des phases cristallines a été déterminée par Diffraction des Rayons X à partir des spectres obtenus sur poudre. La phase minérale largement prépondérante est, sans surprise, représentée par la calcite, à des teneurs généralement très élevées (>95%) à tous les niveaux. Des traces de quartz ont été également détectées dans la quasi-totalité des échantillons.

On note également la présence de quelques pics qui se dégagent légèrement du bruit de fond, mais qui se révèlent être masqués par la trop grande présence de calcite dans les échantillons. Des investigations supplémentaires seraient intéressantes à mener dans le but d'identifier la nature des phases minoritaires. Il s'agirait notamment de procéder à une étape de décarbonatation contrôlée des échantillons afin de s'affranchir des effets de matrice, puis de réitérer les mesures de DRX sur les dépôts ainsi obtenus. Cette approche complémentaire ne s'est pas révélée être indispensable puisque les formations lacustres de Beauce ont déjà fait l'objet de caractérisation détaillée au travers de différents travaux. Les phases minérales accessoires sont en effet essentiellement constituées par la fraction argileuse, généralement représentée par l'association montmorillonite (~50 %), illite (~40%) et kaolinite (~10%).

3.1.3 Reconstitution quantitative de l'assemblage minéralogique

Sur la base des relevés qualitatifs (phases en présence) et quantitatifs (composition chimique globale) collectés, une reconstitution quantitative probable et cohérente du cortège minéralogique a été effectuée au moyen du code MINEV, développé au BRGM (Blanc, 2006, 2007). La répartition des différents éléments chimiques dans les différentes formes minérales est décrite ci-dessous :

- **Ca** : inclus quasi intégralement (>99%) dans la calcite, une fraction minime étant associée à la fraction argileuse (montmorillonite).
- **Si** : présent sous forme de quartz et, accessoirement inclus dans les argiles
- **Al, Mg, Fe, Mn** : associés aux différentes formes argileuses.

Afin d'incorporer ces minéraux dans le modèle, certaines concentrations en éléments ont dû être ajustées, afin d'assurer la stœchiométrie de la composition minérale. En effet, pour certains éléments, tels que Na, K ou encore le Ti, les concentrations se sont révélées être inférieures à la limite de détection analytique. Les corrections apportées ont été effectuées de façon à ce que la concentration de Na, K et Ti ne dépasse pas leurs limites de quantification respectives.

Les différents assemblages minéralogiques ainsi obtenus sont détaillés dans le tableau 24 et traduits graphiquement dans la figure 118 le long de la séquence verticale.

Tableau 24: Synthèse des résultats issus de la phase de reconstitution minéralogique (% massique) des sédiments du site de la plateforme géothermique du site du BRGM à Orléans

	Niveau marneux		Calcaire de Pithiviers				Calcaire d'Etampes	
	20 m	28 m	35 m	39 m	45 m	50 m	67 m	85 m
Calcite	95.0	95.0	95.0	95.0	95.0	97.0	98.0	95.0
Illite	0.0	0.5	0.0	0.0	0.6	0.5	0.5	0.3
Kaolinite	0.3	0.5	0.0	0.0	0.0	0.0	0.5	0.2
Montmorillonite	3.1	2.5	0.5	0.5	2.4	1.0	1.0	4.5
Quartz	1.0	0.5	4.5	3.5	2.0	2.0	2.0	0.0

Compte tenu du fait que les différents types de roche prélevés mobilisent les mêmes éléments majeurs, la composition minéralogique entre les échantillons est inéluctablement très proche. Les différents échantillons ne diffèrent que par les proportions en minéraux accessoires

(quartz et fraction phylliteuse). La séquence 0-50 m a fait l'objet d'une caractérisation plus fine, puisque cette portion sera mise à profit lors d'un test de stockage thermique.

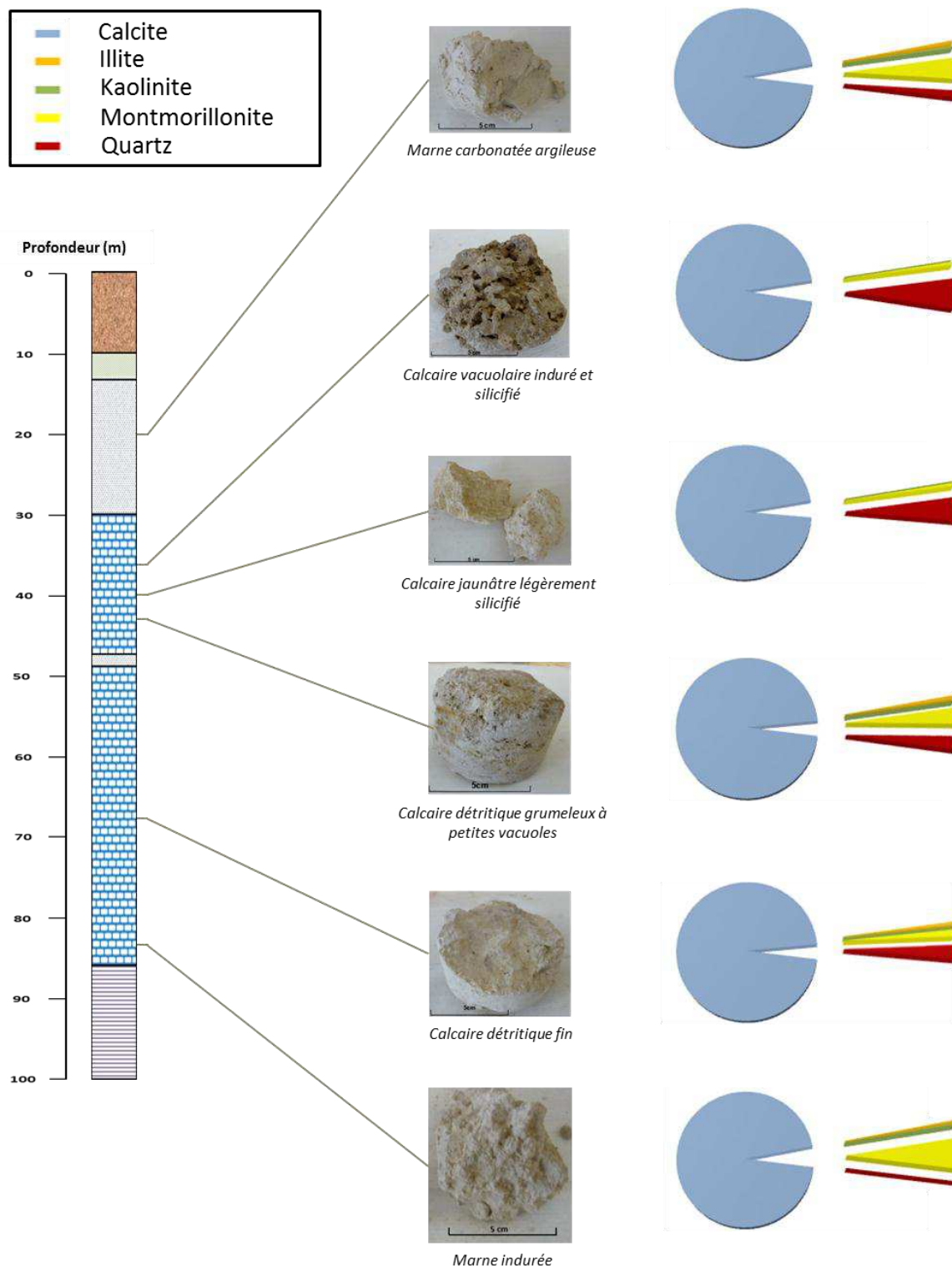


Figure 118 : Aperçu des différents cortèges minéralogiques le long de la séquence verticale (0 et 100m) du forage « sonde géothermique S1 » de la plateforme géothermique du site du BRGM à Orléans.

3.2 Hydrogéochimie du site de la plateforme géothermique

3.2.1 Diagraphies des forages P1 et P3

Des mesures diagraphiques ont tout d'abord été mises en œuvre en complément des relevés géologiques, afin d'établir un état de référence des ouvrages et de la colonne d'eau qu'ils contiennent, ainsi que de guider les opérations de prélèvement de fluide. Les logs diagraphiques, obtenus au niveau des deux ouvrages (P1 et P3) recoupant séparément les 2 assises calcaires, sont représentés sur la figure 19.

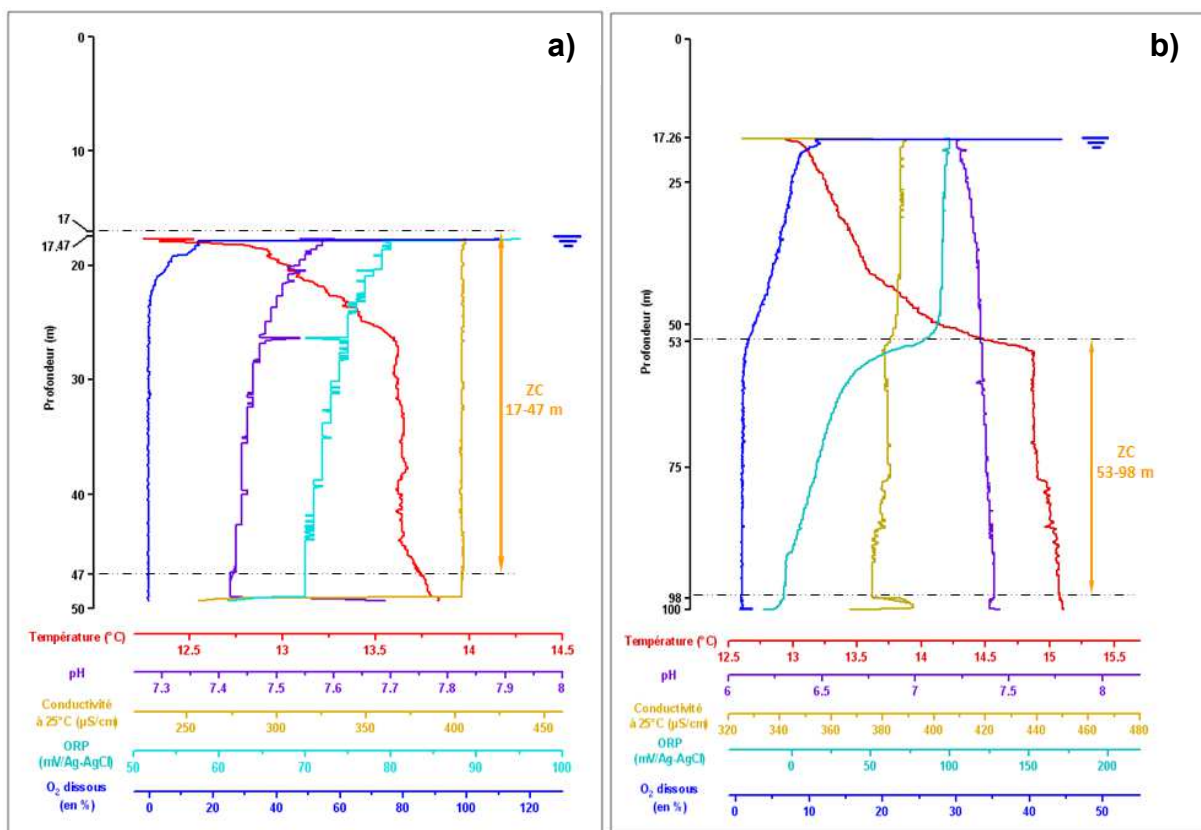


Figure 119 : Profils verticaux de distribution des principaux paramètres physico-chimiques non conservatifs au niveau des deux assises calcaires ; a) assise supérieure (calcaire de Pithiviers) dans le P3 et b) assise inférieure (calcaire d'Etampes) dans le P1 ; ZC = zone crépinée de l'ouvrage

Les profils montrent au niveau des paramètres suivants :

✓ **Température** : une amplitude de quelques degrés est observée au sein de la colonne d'eau. Les températures les plus basses s'observent au sommet de la colonne d'eau et correspondent à l'influence du compartiment de surface (température moyenne journalière

voisine de 8°C le 26/02/2010). La température s'élève ensuite graduellement jusqu'à atteindre l'équilibre avec les eaux de la formation.

✓ **Oxygène dissous** : la partie superficielle de la colonne d'eau, en contact avec l'atmosphère, affiche des valeurs relativement élevées. Les valeurs s'abaissent ensuite très sensiblement avec la profondeur pour atteindre rapidement des valeurs nulles dans les deux ouvrages (P1 et P3).

✓ **Potentiel redox** : l'évolution du potentiel redox avec la profondeur présente une tendance similaire avec un gradient vertical depuis le sommet de la masse d'eau, jusqu'à sa partie inférieure. Ce phénomène est particulièrement remarquable pour le piézomètre P1.

✓ **Conductivité** : contrairement à la stratification observée pour les autres paramètres, les logs de conductivité n'affichent pas de contraste significatif avec la profondeur.

✓ **pH** : une certaine stratification est observée en ce qui concerne le piézomètre P3, dont le profil coïncide avec celui du redox.

Il est important de souligner le fait que la stratification des différents paramètres observés est vraisemblablement plus marquée sur le piézomètre P1 qui présente la caractéristique de ne pas être crépiné sur l'ensemble de la hauteur d'eau. Ce fort gradient observé trouve son origine dans le rééquilibrage thermique et physico-chimique partiel des eaux avec l'atmosphère, phénomène accentué par l'absence de renouvellement des eaux dans la partie supérieure non crépinée.

A noter que les importantes variations décelées au fond des ouvrages ne sont pas prises en compte dans l'interprétation, puisque que celles-ci paraissent vraisemblablement liées aux conditions spécifiques régnant dans le fond du tube (tubage plein de décantation).

Par ailleurs, la confrontation des résultats obtenus avec les logs lithostratigraphiques ne mettent pas en évidence de variation sensible de faciès chimique entre les deux entités hydrogéologiques au niveau des différents paramètres considérés. La nappe des calcaires d'Etampes (niveau inférieur) ne se différencie que par des niveaux d'oxydation légèrement plus faibles, ainsi qu'une température plus élevée du fait de l'influence du gradient géothermique.

Ces mesures *in situ* préliminaires ont ainsi permis de mettre en évidence :

- une stratification de la colonne d'eau avec la présence d'une tranche aquifère supérieure soumise à l'influence de l'atmosphère et la tranche aquifère non perturbée. Ces informations seront utiles pour le positionnement de la pompe lors des opérations de prélèvement.
- une absence de distinction nette de composition chimique entre les 2 entités, sur la base des paramètres analysés (notamment la conductivité).

3.2.2 Analyses chimiques et géochimiques des eaux

Suite aux différentes mesures diagraphiques, une première campagne de prélèvement a été menée le 26/02/2010 sur les 3 ouvrages implantés sur le site afin de compléter la caractérisation initiale du site. Les résultats d'analyse sont reportés dans l'annexe 7.

Les résultats des analyses quantitatives relatives à la composition en éléments majeurs sont représentés sous forme graphique afin d'en faciliter les interprétations (Figure 106). La validité des résultats analytiques a été vérifiée au préalable par le calcul des bilans ioniques à l'aide du code géochimique de calcul PHREEQC. Les écarts relatifs calculés sur les balances ioniques n'excèdent pas le seuil des 4%, confirmant ainsi la pertinence des analyses.

On constate, tout d'abord, que les eaux prélevées au niveau des 3 ouvrages recoupant les deux assises calcaires, présentent des compositions similaires. Le faciès hydrochimique est de type bicarbonaté calcique et magnésien en se situant proche de l'apex calcique du diagramme de Piper (Figure 120). Les espèces dominantes sont largement représentées par les ions calcium (Ca^{2+}) et hydrogénocarbonate (HCO_3^-). Elles présentent une dureté moyenne et une charge dissoute relativement moyenne (conductivité à 25°C comprise entre 420 et 435 $\mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$). Les valeurs de pH relevées sont très proches pour les 3 ouvrages (comprises entre 7,42 et 7,45) et reflètent un caractère très légèrement basique. Les calculs d'équilibre thermodynamique permettent d'en déduire un équilibre de l'aquifère avec une phase gazeuse contenant près de 0,7 % de CO_2 , c'est à dire largement supérieure à la pression partielle en CO_2 de l'atmosphère (~0,03%).

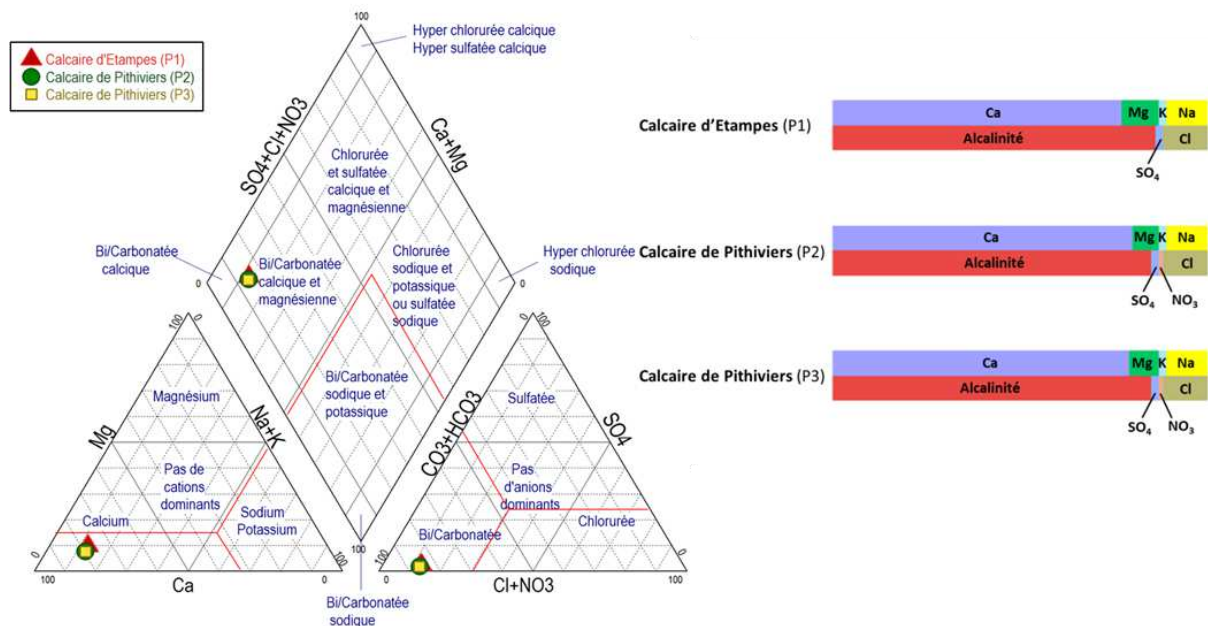


Figure 120 : Diagrammes de Piper et de Stabler établis à partir des eaux prélevées au niveau des 3 ouvrages interceptant les nappes des deux assises calcaires (nappe des calcaires d'Etampes et nappe des calcaires de Pithiviers).

✓ Analyse de l'état redox du système

L'évaluation de l'état d'oxydo-réduction global du système a été effectuée grâce aux calculs de spéciations aqueuses, dans le but d'appréhender les mécanismes réactionnels responsables de la composition des eaux. Les couples redox identifiés dans le milieu correspondent aux couples mettant en jeu certaines espèces du cycle de l'azote, à savoir les nitrates, les nitrites, et l'ion ammonium. L'examen des résultats montre que la distribution de ces espèces est inégalement répartie en fonction de la profondeur :

- les eaux des formations des calcaires de Pithiviers (partie supérieure) ne présentent que les espèces du couple $\text{NO}_3^- / \text{NO}_2^-$, avec des teneurs relativement faibles pour chacune d'entre elles ($\sim 2 \text{ mg/l}$ de NO_3^- et 20 à 30 ppb de NO_2^-).

- les eaux de la formation sous-jacente (calcaire d'Etampes) font apparaître des teneurs en nitrate plus faibles ($\sim 0,5 \text{ ppm}$), ainsi que quelques traces d'azote ammoniacal.

Ces observations laissent présupposer l'existence d'un mécanisme de dénitrification, rendu plausible par : (i) l'absence d'oxygène du milieu, qui permet d'envisager l'utilisation des

nitrate comme accepteur d'électrons, (ii) la présence de matière organiques dans les eaux, paramètre clé pour la faisabilité du processus (donneur d'électron) et (iii) la présence de sels minéraux en quantité suffisante pour constituer une source d'oligo-éléments pour le métabolisme bactérien.

Le calcul du potentiel d'oxydoréduction pour chacun des couples identifiés, met en jeu les réactions suivantes :

- Pour le compartiment supérieur : $\text{NO}_3^- + 10 \text{H}^+ + 8\text{e}^- \rightleftharpoons \text{NO}_2^- + \text{H}_2\text{O}$
- Pour le compartiment inférieur : $\text{NO}_3^- + 10 \text{H}^+ + 8\text{e}^- \rightleftharpoons \text{NH}_4^+ + 3 \text{H}_2\text{O}$

La figure 21 présente la confrontation entre les potentiels calculés et mesurés pour les deux compartiments.

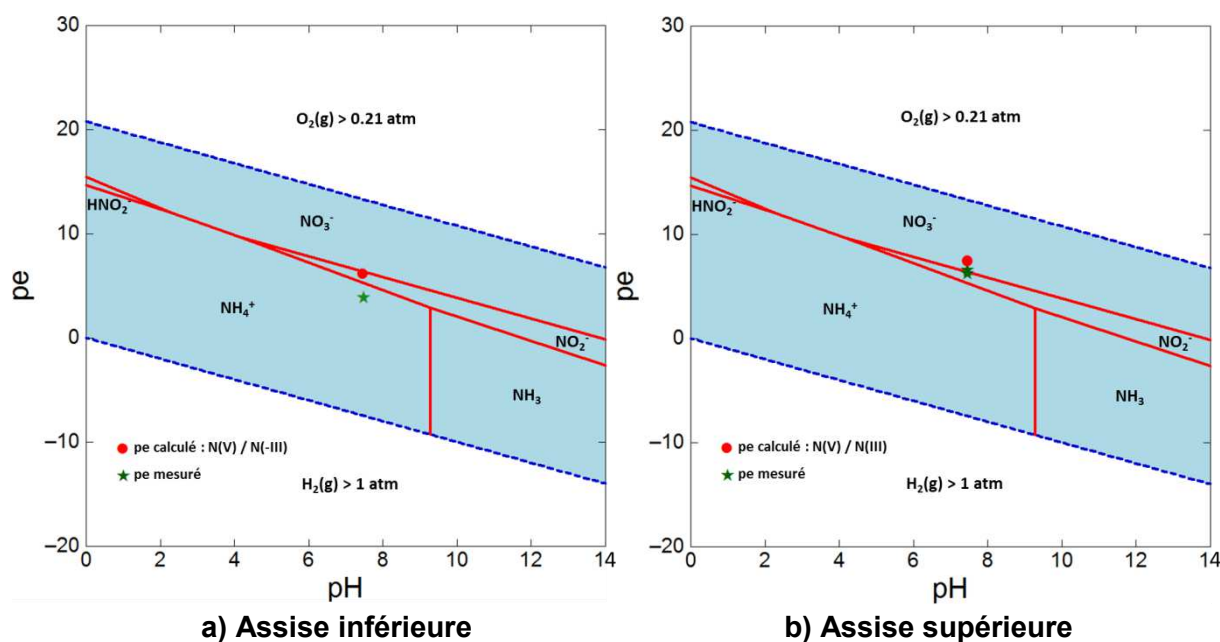


Figure 121 : Diagramme de Pourbaix simplifié, $pe=f(pH)$, des principales espèces azotées (concentration totale en espèce dissoute : $c = 10^{-3} \text{ M}$; température = 25°C ; exclusion du N_2) et représentation des points de prélèvements, ainsi que des potentiels redox calculés et mesurés des couples $\text{NO}_3^-/\text{NO}_2^-$ et $\text{NO}_3^-/\text{NH}_4^+$

On constate que le potentiel redox mesuré pour l'assise calcaire supérieure correspond pratiquement au potentiel du couple $\text{NO}_3^-/\text{NO}_2^-$. En revanche, on note un certain écart entre les valeurs calculées et mesurées pour l'assise calcaire inférieure. Bien que les valeurs de potentiels redox mesurés ne soient utilisées qu'à titre indicatif, les observations font tout de

même apparaître un certain nombre d'indices révélateurs sur la capacité dénitrifiante de l'aquifère.

Les valeurs de potentiel redox mesurées sont tout-à-fait en accord avec la gamme de potentiel redox habituellement reportée dans la littérature pour l'accomplissement des réactions de dénitrification et/ou réduction dissimulatrice des nitrates, *i.e* entre 100 et 400 mV/ENH (Reddy et D'Angelo, 1994).

3.2.3 Conclusions

Avec une piézométrie très proche, les eaux portées par le calcaire de Pithiviers et les calcaires d'Etampes affichent une composition physico-chimique similaire (Tableau 25), attestant vraisemblablement d'un phénomène de mélange entre les deux compartiments. Les résultats font apparaître de faibles teneurs en nitrate et révèlent la présence d'espèces azotées à différents états de réduction, indiquant la présence d'un processus actif d'abattement des nitrates.

Tableau 25 : Comparatif des propriétés chimiques des eaux souterraines des calcaires de Pithiviers et d'Etampes

	pH	Eh (mV/ENH)	T°C (°C)	O ₂ dissous (mg/L)	Conductivité à 25 °C (µS.cm ⁻¹)	Espèces azotées NO ₃ /NO ₂ /NH ₄ ⁺	IS espèces carbonatées		IS espèces silicatées	
							Calcite	Dolomite	Quartz	Calcédoine
Assise inférieure (50-85 m) : Calcaire d'Etampes	7.47	210 à 280	13.6 à 13.7	< 0.1	430	1.9 / 0.03 / 0	0.11	0.32	1.1	0.73
Assises supérieure (30-48 m) : Calcaire de Pithiviers	7.47	290 à 340	14.9 à 15.1	< 0.1	420	0.5 / 0 / 0.05	0.1	0.44	0.94	0.66

En complément, l'analyse de la composition chimique des sédiments le long de la séquence verticale, montrent que les différents types de roches mobilisent les mêmes éléments majeurs et présentent une composition minéralogique très similaire.

4. Mise en œuvre d'un essai de stockage de chaleur sensible

L'objectif de cet essai vise à évaluer l'incidence du cycle de fonctionnement d'une sonde géothermique en mode climatisation au niveau du milieu environnant. A cette fin, le dispositif expérimental a été mis à profit pour induire une perturbation thermique durable dans le proche sous-sol de façon à suivre les interactions avec le milieu récepteur.

3.1 Méthodologie

3.1.1 Paramétrisation thermodynamique

L'essai consiste à faire circuler le fluide (mélange eau-monopropylène-glycol) de façon continue dans la sonde géothermique, à un débit de $1,2 \text{ m}^3/\text{h}$ et à une température d'entrée de sonde de 45°C pendant une période de 180 jours. Ces conditions expérimentales, quelque peu surréalistes au regard des modes de fonctionnement habituellement rencontrés, ont été dimensionnées de manière à induire une perturbation thermique significative et durable, susceptible d'atteindre le piézomètre de suivi positionné à 3 mètres de la sonde, par l'intermédiaire duquel un suivi qualitatif des paramètres physico-chimiques et microbiologiques a été mené.

Le suivi de la réponse thermique du massif rocheux a été opéré durant toute la période de l'essai, grâce au réseau de fibre optique implanté dans le sous-sol. L'acquisition comporte plus de 300 points de mesures répartis sur la longueur des fibres, avec une fréquence d'enregistrement à pas de temps horaire, soit près de 1,3 millions de valeurs récoltées au terme de l'essai. La correction de la dérive du signal provenant des fibres optiques a été effectuée, préalablement à la conduite de l'essai, par comparaison avec un log thermique (Figure 122), réalisé sur la tranche de sol affecté par l'essai (50 m). Les résultats obtenus affichent une bonne cohérence et autorisent ainsi l'exploitation des données de mesures fournies par le réseau de fibre optique pour la réalisation des essais.

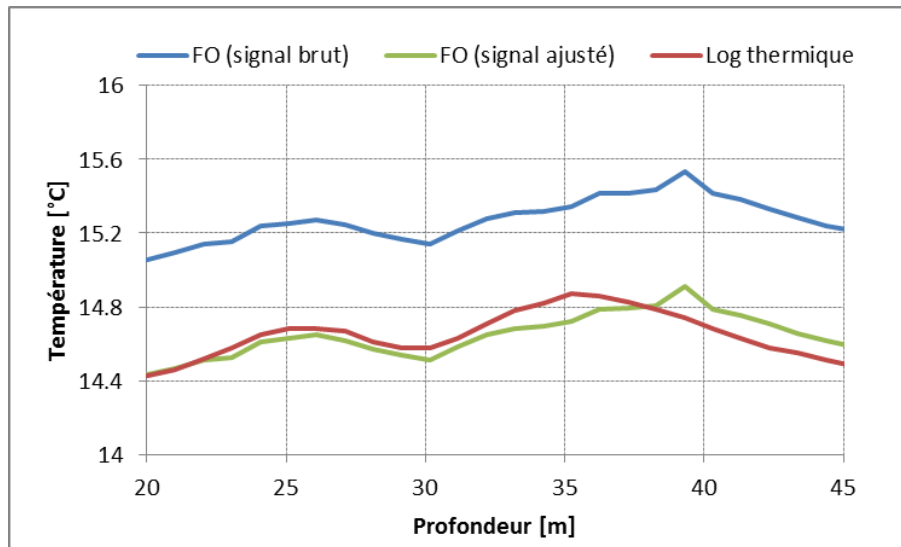


Figure 122 : Ajustement du signal émis par la fibre optique avant la mise en œuvre de l'essai (FO = fibre optique)

3.1.2 Dispositif de prélèvement

Dans le but de suivre l'évolution de la qualité des eaux au droit du site, un dispositif de prélèvement innovant, inspiré des échantillonneurs pneumatiques, a été élaboré. Les méthodes conventionnelles employées jusqu'ici au niveau des autres sites expérimentaux trouvent, en effet, dans ce contexte particulier, leurs limites, du fait de la nature des transferts de chaleur mis en jeu. La propagation du panache au voisinage de la sonde étant régi principalement par des échanges conductifs, qui sont par définition très lents, la priorité a consisté à perturber au minimum la dynamique des transferts et l'évolution de ce panache, en évitant d'induire des perturbations hydrodynamiques importantes (création d'un cône d'appel consécutif à la phase de pompage, pouvant dissiper le peu de chaleur emmagasinée dans la formation).

Les éléments constitutifs du dispositif et le principe de fonctionnement sont schématisés sur les figures 123 et 124. Le système de prélèvement comporte à son extrémité un clapet anti-retour, positionné dans la portion crépinée de l'ouvrage ($z=36$ m) et isolé de la partie supérieure de l'ouvrage (tube plein) en contact avec l'atmosphère par un obturateur de conduite (« packer ») muni d'un système de by-pass. Le système est relié à la surface par 2 flexibles HDPE de 4 mm de diamètre.

A l'état initial (Figure 124), l'ensemble du circuit est maintenu sous pression d'azote (d'environ 1 bar) supérieure à la pression de l'eau à la profondeur d'échantillonnage. La dépressurisation du circuit provoque l'ouverture de la soupape et autorise ainsi l'eau de la

formation aquifère à s'introduire dans le dispositif, jusqu'à atteindre l'équilibre avec la pression de la nappe (*i.e* le niveau statique). Pour récolter l'eau de la formation, il suffit de remettre le tuyau de connexion à une pression d'environ 2 bars supérieure à la pression de l'eau à la profondeur d'échantillonnage. L'eau contenue dans le dispositif, soit un volume d'environ 450 mL, est ainsi chassée vers la surface.

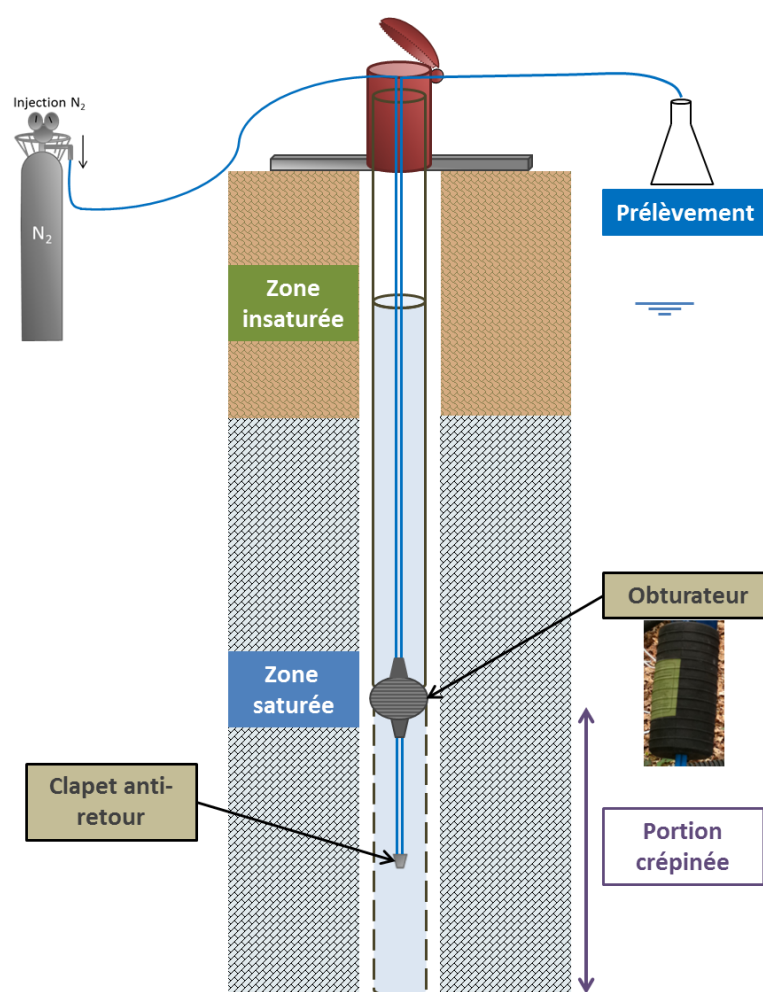


Figure 123 : Dispositif de prélèvement innovant d'eau mis en œuvre dans le cadre des essais

L'étape d'échantillonnage *stricto sensu* est précédée d'un certain nombre de cycles de purge du circuit, nécessaires à la désinfection du circuit (cycles d'injection d'une solution d'alcool) et à l'atteinte des critères de stabilisation des paramètres physico-chimiques non conservatifs (pH, Eh, redox), tels qu'énoncés au chapitre II. Cette validation de la procédure a fait l'objet d'investigations préliminaires qui ne seront pas exposés dans le présent chapitre. Celle-ci a comporté également une analyse comparative avec la méthode de pompage traditionnelle sur le forage voisin au lancement de l'essai.

L'eau collectée est scindée en 2 fractions : une partie de l'échantillon brut est réservée à l'analyse des paramètres physico-chimiques, tandis que la seconde fraction est destinée à la mesure des paramètres microbiologiques.

Ce dispositif d'échantillonnage à volume fini a été laissé à demeure durant toute la durée de l'expérimentation. Le principal mérite de cet outil, contrairement aux autres préleveurs à volume fini (type bailer), est de préserver les eaux de la nappe du contact avec le milieu extérieur (*via* le packer), le renouvellement de l'ouvrage étant assuré naturellement par les eaux de la formation.

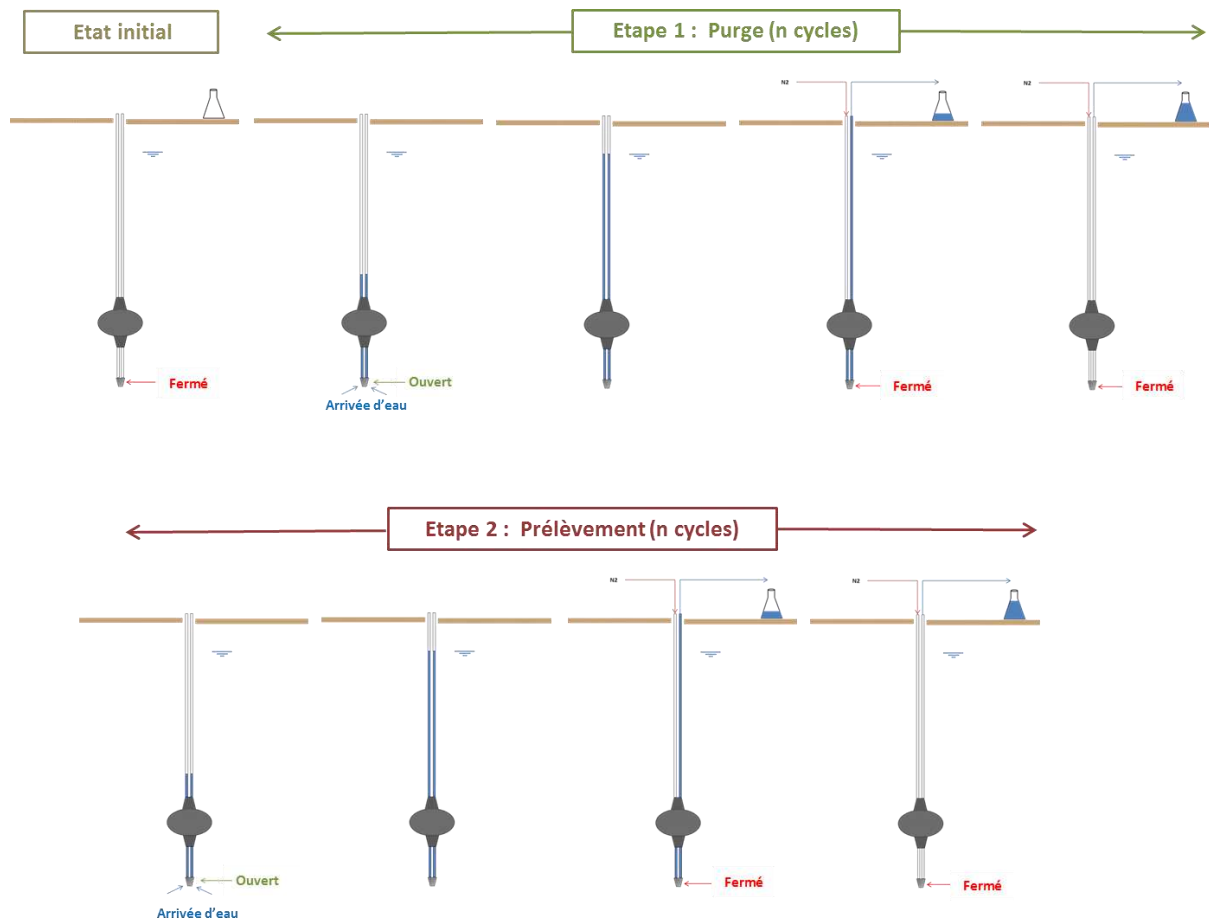


Figure 124 : Principe de fonctionnement du dispositif de prélèvement d'eau

3.2 Résultats

3.2.1 Evolution thermique

3.2.1.1 Distribution des températures en profondeur

La figure 125 présente l'évolution des températures le long de la séquence verticale en fonction du temps au cours de l'essai. On observe tout d'abord que les niveaux de température

augmentent progressivement au cours de l'essai, quelle que soit la profondeur considérée, pour atteindre des valeurs proches des maxima début 2012.

A ce premier constat s'ajoute une distribution hétérogène des températures en fonction de la profondeur. Hormis les zones d'anomalies thermiques très locales (allusion faite pour une profondeur voisine de 27-28 m), il est en effet possible de distinguer 2 portions de terrain qui présentent un comportement sensiblement différent face aux sollicitations thermiques : (i) la portion de terrain située dans la partie superficielle (de 20 à 35 m), qui affiche des niveaux de température relativement élevés en comparaison avec (ii) la zone située entre 35 et 45 mètres de profondeur, dans laquelle les niveaux de température relevés sont moindres. A noter que l'influence des températures extérieures a été écartée aux profondeurs considérées comme en atteste la figure 126, qui met en exergue la zone d'influence du compartiment de surface.

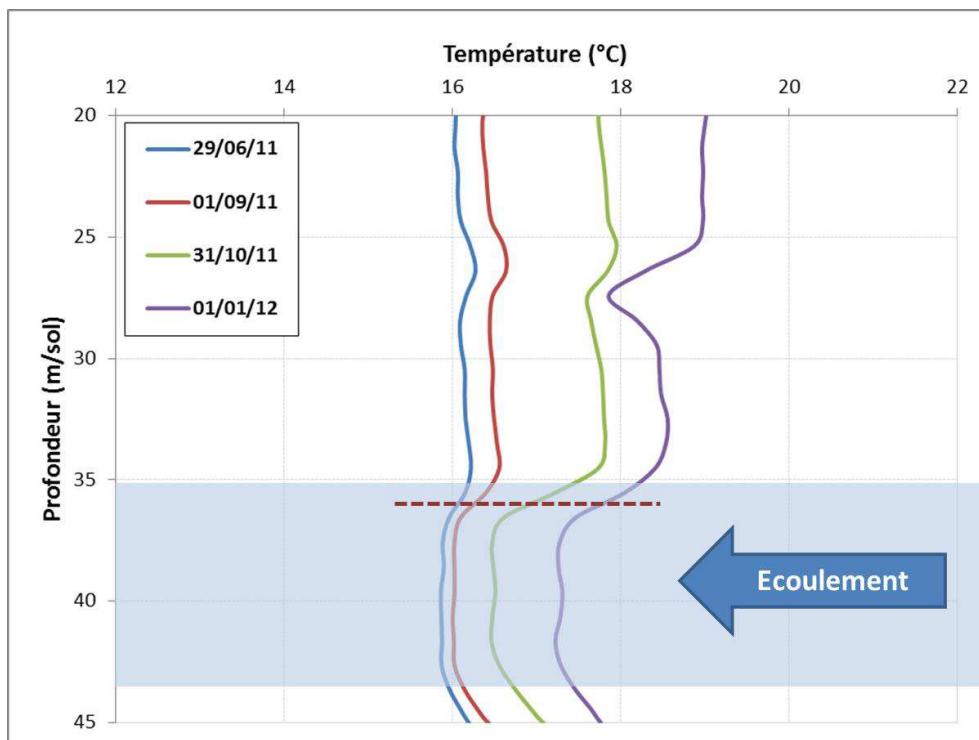


Figure 125 : Répartition des champs de température en fonction de la profondeur et du temps.
L'emplacement de la zone de prélèvement est symbolisé par un trait pointillé.

La confrontation avec les relevés géologiques (se reporter à la section correspondante) permet d'apporter des éléments de réponse, qui seront vérifiés dans le paragraphe suivant. Les deux zones présentent, en effet, une lithologie radicalement différente (la zone 1 est caractérisé par un faciès marneux plastique alors que la zone calcaire 2 présente un faciès calcaire très fracturé), avec pour conséquence, des propriétés hydrodynamiques complètement divergentes.

La première zone est ainsi considérée comme purement imperméable (valeurs de K habituellement retenue pour les marnes : 10^{-8} à 10^{-9} m/s) tandis que la zone sous-jacente est très productive, et apte à générer un écoulement conséquent (valeur de K supérieure de plusieurs ordres de grandeur). On peut en déduire que la présence d'un écoulement souterrain serait responsable de l'atténuation des températures observées, *via* des phénomènes de dilution-brassage du panache.

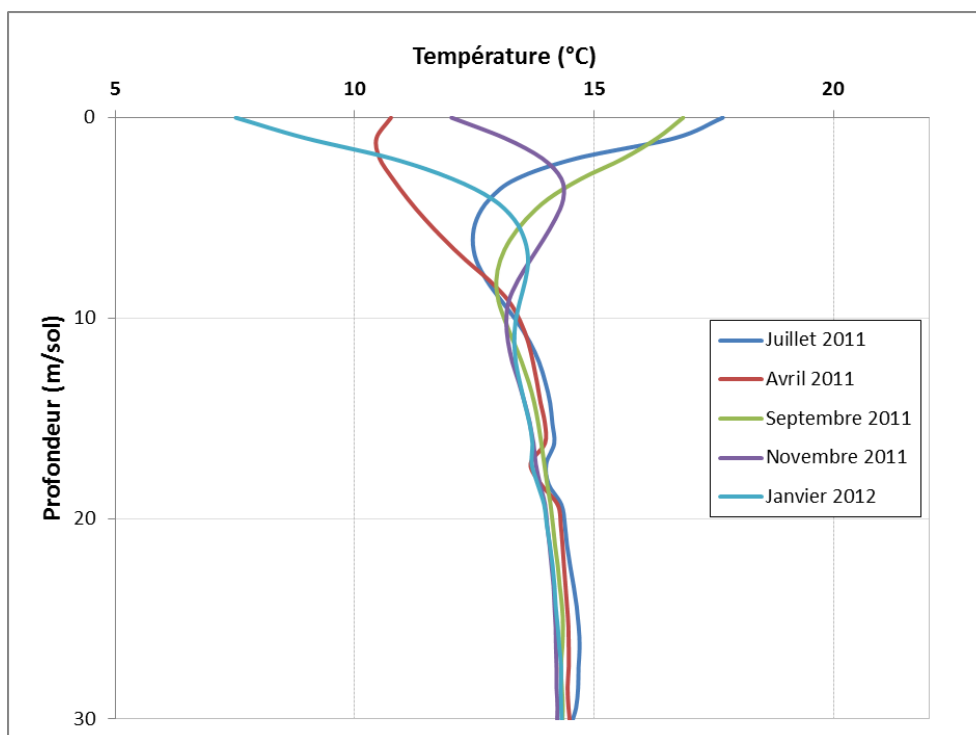


Figure 126 : Mise en évidence des variations saisonnières de température dans la tranche superficielle de l'ouvrage P2 (hors zone d'influence de la sonde). La zone d'influence se limite à une profondeur d'environ 10 m.

3.2.1.2 Modélisation du comportement du sous-sol

Afin de cerner la nature des échanges thermiques mis en jeu, un jeu de simulations a été effectué au niveau des deux zones considérées, en prenant en compte les propriétés thermiques des différents faciès (Tableau 26).

Tableau 26 : Propriétés thermiques des couches rencontrées (d'après Pahud, 2002)

Propriétés thermiques sol	Calcaire			Marne		
	min	moy	max	min	moy	max
Conductivité [W/m.K]	2,5	2,8	4	1,5	2,1	3,5
Capacité [MJ/m ³ .K]	2,1	2,25	2,4	2,2	2,25	2,3

Cette modélisation, réalisée par un membre de l'équipe géothermie du BRGM, met en œuvre une méthode de résolution analytique des flux de chaleur, avec une série d'hypothèses simplificatrices. La sonde est ainsi assimilée à un cylindre de longueur infinie, maintenu à une température de paroi constante (circulation du fluide à température d'entrée constante égale à 45°C). Le flux linéique q' échangé en direction du sol à travers la paroi du forage est alors défini par la relation suivante (Carslaw et Jaeger), ΔT représentant l'écart entre la température imposée à la paroi du cylindre pendant l'essai et la température initiale du sol:

$$\text{Et} \quad q' = \lambda \Delta T \frac{8}{\pi} \int_0^\infty \frac{e^{-z\beta^2}}{J_0^2(\beta) + Y_0^2(\beta)} \cdot \frac{d\beta}{\beta} \quad (\text{V.1})$$

$$\text{Avec} \quad z = \frac{a \cdot t}{r_b^2} \quad (\text{V.2})$$

a étant la diffusivité thermique du milieu (m²/s), r_b le rayon du forage, λ la conductivité thermique du milieu (W/m/K), t le temps (s), la température (K), J_0 et Y_0 les fonctions de Bessel de première et deuxième espèces d'ordre 0.

L'application de cette équation permet d'obtenir l'évolution du flux linéique échangé avec le sol au cours du temps pendant les 180 jours de l'essai. La solution analytique suivante, proposée par Ingersoll, permet le calcul direct du champ de température autour d'un cylindre infini à flux imposé constant à la paroi :

$$\Delta T = \frac{q'}{\lambda} \cdot \frac{1}{\pi} \int_0^\infty \frac{e^{-\beta^2 z} - 1}{J_1^2(\beta) + Y_1^2(\beta)} [J_0(p\beta)Y_1(\beta) - J_1(\beta)Y_0(p\beta)] \frac{d\beta}{\beta^2} \quad (\text{V.3})$$

$$\text{Avec} \quad p = \frac{r}{r_b} \quad (\text{V.4})$$

Cette solution analytique étant valable pour un flux constant, il convient de prendre en compte l'évolution du flux réel au cours du temps par application de la méthode de superposition temporelle (Ingersoll et Plass, 1948). Cette méthode permet alors d'obtenir l'évolution du champ de température au voisinage de la sonde géothermique dans les conditions spécifiques de cet essai.

Les figures 127 et 128 comparent les résultats de simulation obtenus pour les deux zones ciblées aux valeurs expérimentales enregistrés au cours de l'essai.

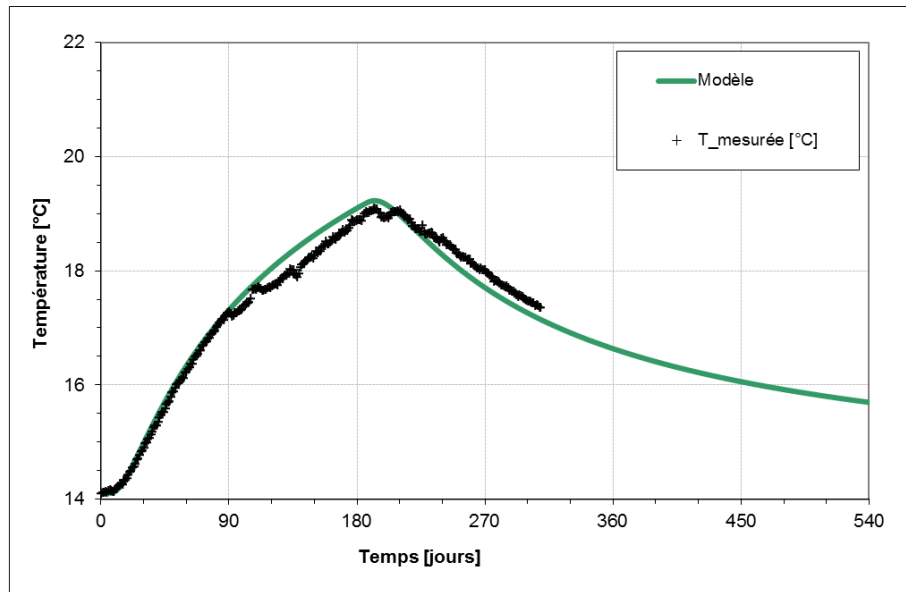


Figure 127 : Comparaison entre températures simulées et mesurées au niveau de la zone marneuse, à une distance de 3 m de la sonde géothermique (avec $\lambda = 1,5 \text{ W/m.K}$)

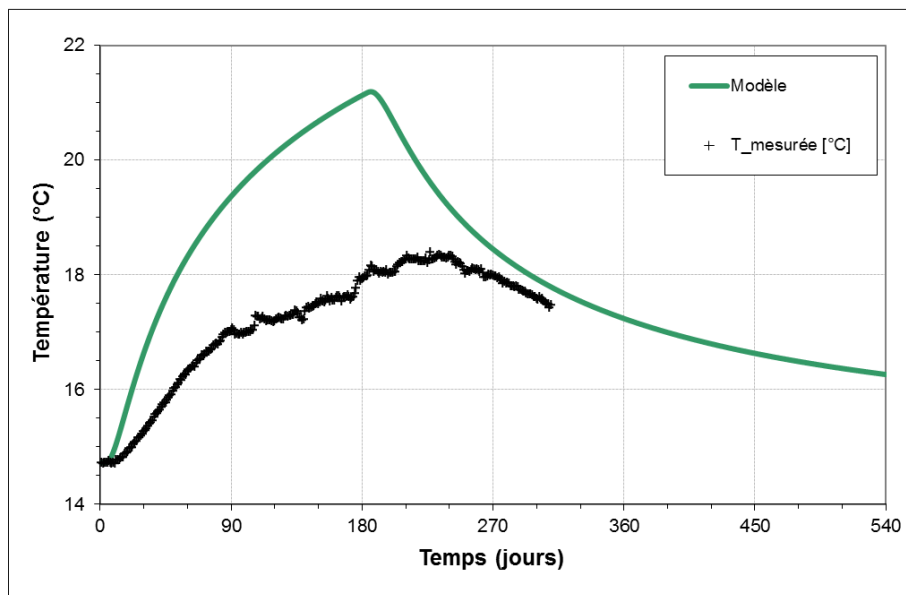


Figure 128 : Comparaison entre températures simulées et mesurées au niveau de la zone calcaire perméable, à une distance de 3 m de la sonde géothermique. (avec $\lambda = 2,5 \text{ W/m.K}$)

L'examen de ces figures permet d'en extraire les observations suivantes :

- Au niveau de la zone marneuse, le modèle analytique de conduction pure permet d'expliquer convenablement la nature des transferts, la courbe du modèle pour des

valeurs de conductivité et diffusivité thermiques minimales est quasiment confondue avec la courbe des points de mesure

- En revanche, dans la zone sous-jacente, le modèle de conduction surestime les niveaux de température. Ce phénomène s'explique par la présence d'une nappe responsable du lessivage thermique des formations. Un modèle numérique, intégrant transfert de chaleur et écoulement, serait de toute évidence plus approprié dans ce cas de figure.

3.2.2 Evolution des paramètres physico-chimiques

Durant la période couverte par l'essai, 5 campagnes de prélèvements se sont déroulées, à intervalles réguliers, de manière à suivre l'évolution de la qualité de l'eau dans les zones d'intérêt au droit du site. Seront commentés dans cette section l'évolution des indices de saturation, des paramètres non conservatifs ainsi que espèces conservatives présentant un intérêt dans le cadre de la présente étude.

3.2.2.1 Evolution des indices de saturation

Les figures 129 et 131 ci-dessous illustrent l'évolution des indices de saturation de l'eau prélevée vis-à-vis des phases minérales carbonatées (calcite et dolomite) ainsi que des polymorphes de la silice. Le suivi de l'évolution des autres phases minérales intégrées dans l'assemblage minéralogique n'a pu être analysé, étant donné que la concentration de certaines espèces chimiques en solution, notamment le fer, était en deçà des limites de quantification.

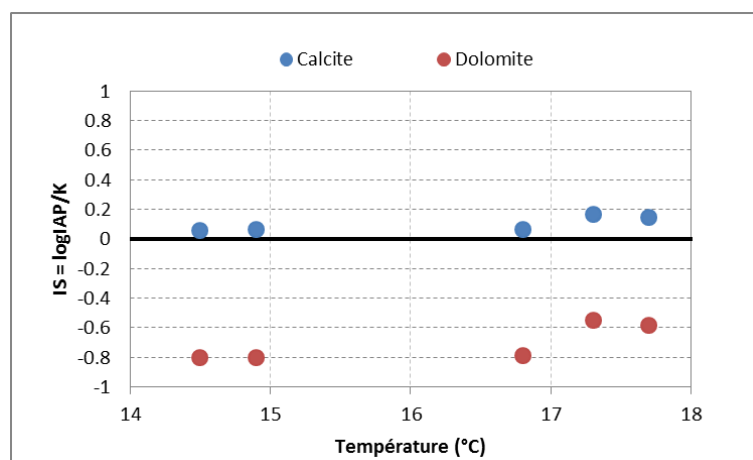


Figure 129 : Evolution des indices de saturation des eaux prélevées vis-à-vis des phases minérales carbonatées

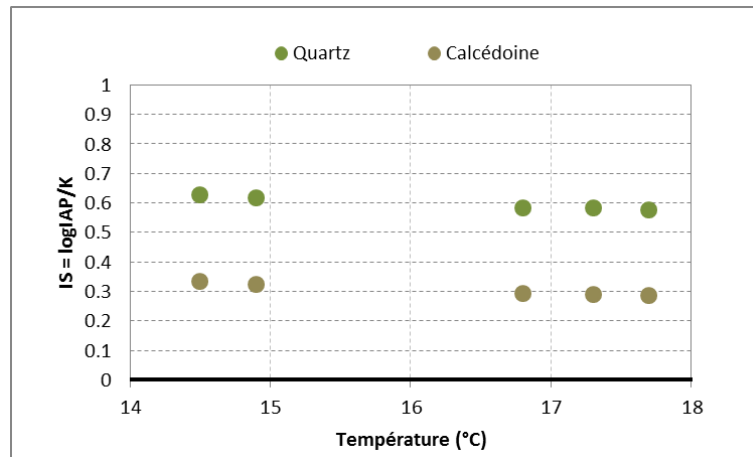


Figure 130 : Evolution des indices de saturations des eaux prélevées vis-à-vis de la silice, plus ou moins bien cristallisée

L'évolution des indices de saturation ne fait apparaître aucune variation significative des équilibres en fonction de la température de l'aquifère, qui évolue entre 14,5 et 17,7°C.

3.2.2.2 Evolution des paramètres non conservatifs

Les mesures des paramètres non conservatifs ont été réalisés ponctuellement, au cours de chacune des phases de prélèvement.

Les mesures de conductivité électrique rapportées à 25 °C ne montrent, tout d'abord, aucune variation notable, avec des valeurs comprises entre 422 et 426 $\mu\text{S}.\text{cm}^{-1}$. Les mesures de pH et de potentiel redox sont reportées sur la figure 31. Les valeurs de pH oscillent entre 7,42 et 7,45 au cours des 3 premières campagnes de prélèvement (juillet, août, octobre), puis leurs valeurs augmentent légèrement sur la fin de l'essai pour atteindre des valeurs voisines de 7,50 (7,51 et 7,49 pour les campagnes de décembre 2011 et janvier 2012 respectivement). L'évolution du potentiel redox montre une tendance significativement différente par rapport aux autres paramètres précédemment décrit. Les valeurs enregistrées sont en effet relativement stables durant les 3 premières campagnes de prélèvement, puis s'abaissent au cours des deux dernières campagnes de mesures, qui correspondent aux températures les plus élevées. Compte tenu des informations exposées jusqu'à présent, il apparaît difficile d'apporter des éléments de réponse. Ces observations seront commentées dans le paragraphe qui suit.

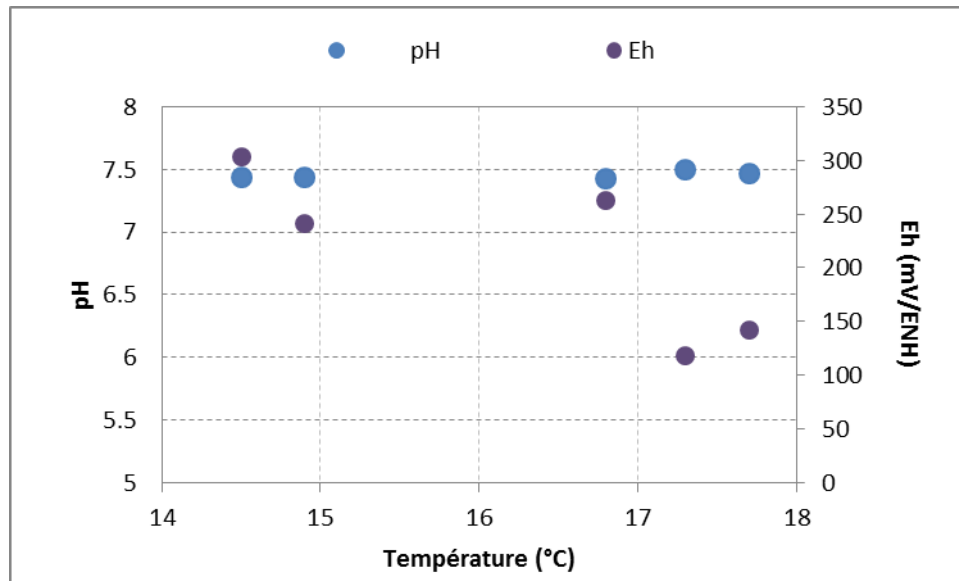


Figure 131 : Evolution du pH et du potentiel redox au cours de l'essai (l'évolution des températures correspond à l'évolution temporelle)

3.2.2.3 Evolution des espèces conservatives

Parmi les différentes campagnes de prélèvement, seulement 2 d'entre elles ont fait l'objet d'une caractérisation poussée (majeurs et traces) et correspondent respectivement à la première et l'avant dernière campagne de prélèvement (juillet et décembre 2011). Les autres campagnes de mesures ont uniquement été caractérisées sur le contenu en élément majeurs.

Les résultats obtenus concernant les éléments traces ne montrent, en premier lieu, aucune variabilité au cours de la période couverte par l'essai. En revanche les teneurs en nitrate, relativement stables durant les premiers mois du suivi (juillet à octobre), voient leur concentration chuter au mois de décembre (Figure 132) pour atteindre, au mois de janvier 2012, un niveau intermédiaire entre les concentrations initiales et les teneurs relevées en décembre. A noter que cette chute a été accompagnée de la présence de sulfures dissous ($\text{H}_2\text{S}/\text{HS}^-$), à des concentrations avoisinant les 0,2 ppm. Ces sulfures n'ont pas été retrouvés lors de la campagne de mesure de janvier 2012. Par ailleurs, cette présence de sulfure n'a pas été accompagnée d'une réduction significative des teneurs en sulfate de la solution.

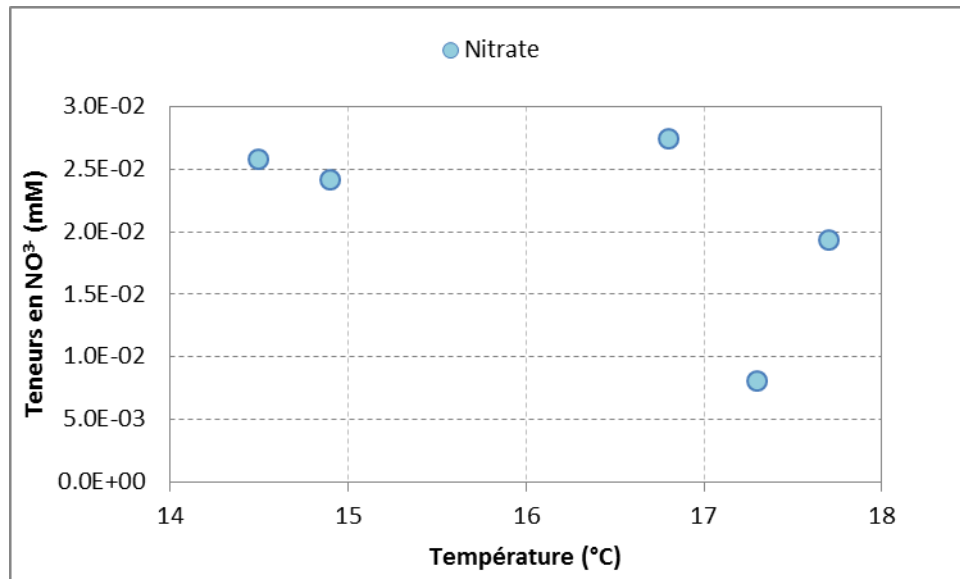


Figure 132 : Evolution des teneurs en nitrates durant la période de l'essai (l'évolution des températures correspond à l'évolution temporelle)

Sur la base des analyses collectées, il apparaît délicat de proposer une interprétation claire quant à l'évolution des paramètres observés. Néanmoins, différentes hypothèses sont avancées pour expliquer ce phénomène.

L'abaissement des teneurs en nitrate peut être également la conséquence d'une évolution saisonnière au niveau de la nappe. Pour inférer ou confirmer cette hypothèse, un prélèvement a été réalisé en janvier sur le piézomètre P2. Les teneurs en nitrate obtenues se sont révélées supérieures à celles observées (2,71 mmol/l contre 1,9 mmol/l pour les ouvrages P2 et P3 respectivement). De plus, une série de prélèvement réalisée en 2010 à différentes époques de l'année, bien avant la mise en œuvre de cet essai n'ont pas montré de variations notables des teneurs en nitrate.

Il convient par la suite de remettre en cause la méthode de prélèvement en elle-même qui est susceptible d'introduire des biais dans l'échantillonnage. En effet, malgré l'isolement de la partie crépinée de l'aquifère vis-à-vis de la surface, le renouvellement de l'eau dans l'ouvrage est peut-être insuffisant pour garantir la représentativité des prélèvements. L'analyse systématiques des paramètres physico-chimiques non conservatifs (pH, Eh, conductivité) a pourtant permis de définir ces critères de représentativité.

On ne peut également exclure que l'eau prélevée puisse provenir d'un mélange partiel avec les eaux contenues dans la formation marneuse, caractérisée par un faible temps de

renouvellement des eaux et par impact thermique beaucoup plus marqué (ΔT de l'ordre de 5 °C en décembre). Cette augmentation de température, couplée à un faible taux de renouvellement des eaux, pourrait stimuler l'activité biologique et contribuer à l'abattement des faibles teneurs en nitrate décelées dans les eaux, avec pour conséquence la diminution du potentiel redox. Compte tenu de l'absence de fer dissous dans les eaux, les sulfates ont pu être par la suite être ponctuellement utilisés comme accepteur d'électrons, conduisant à la production de sulfures. A noter que la présence de sulfure peut provenir également de mécanismes de dénitrification autotrophe, *via* l'utilisation des minéraux sulfurés comme donneurs d'électrons. Cependant, ces minéraux n'ont pas été identifiés dans l'assemblage minéralogique et les teneurs en fer dissous n'ont jamais excédées la limite de quantification analytique.

3.2.3 Evolution des paramètres microbiologiques

Faute de temps, seul le nombre de bactérie totale a pu être suivi au cours de l'essai. L'illustration ci-dessous présente, à titre indicatif, l'aspect des cellules bactériennes en microscopie à épifluorescence (Figure 133). L'évolution du nombre de bactéries totales est reportée sur la figure 134.

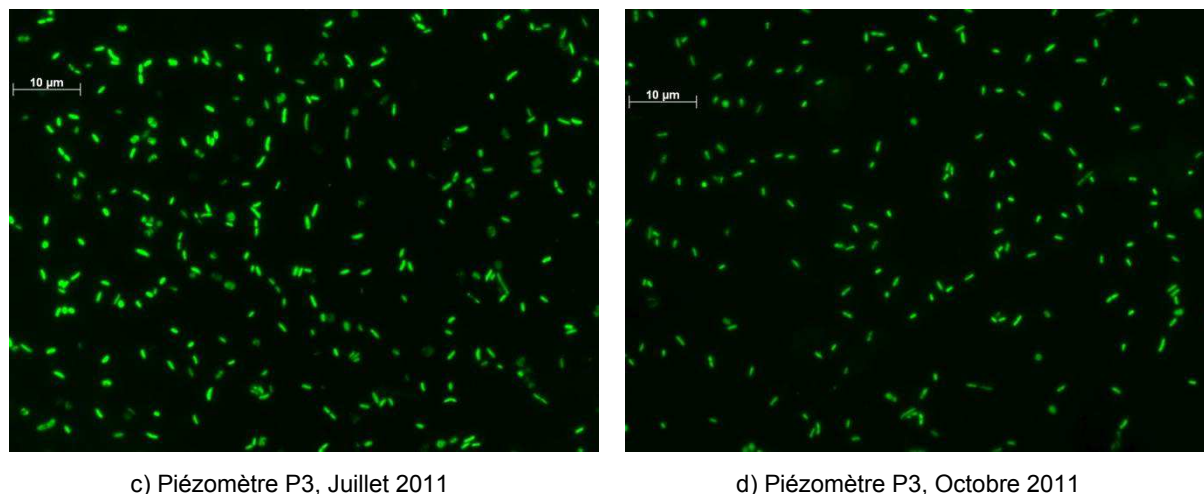


Figure 133 : Observations en microscopie en épifluorescence sur membranes de filtration des bactéries, après marquage à l'acridine orange.

Les résultats obtenus sur l'ensemble de la période couverte par l'essai révèlent que le nombre de bactéries demeure relativement constant au cours du temps. Aucune corrélation (tests

statistiques) n'a pu être mise en évidence avec les niveaux de températures en raison du nombre limité de points de mesures.

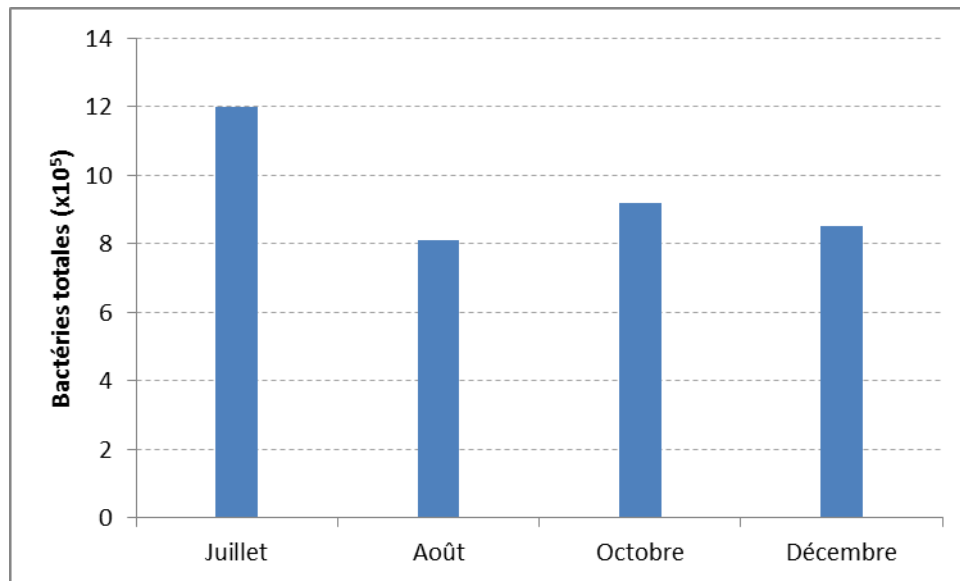


Figure 134 : Evolution du nombre de bactéries totales durant la période de l'essai

5. Conclusions

Le bilan des travaux menés à l'échelle de la plateforme expérimentale pour les échangeurs géothermiques a, tout d'abord, permis de fournir une caractérisation initiale assez complète du site comprenant :

- la caractérisation des différents faciès rencontrés le long de la séquence verticale, accompagnée d'une série d'analyses chimiques et minéralogiques.
- la caractérisation de la colonne d'eau au moyen de diagraphies physico-chimiques appuyée par une batterie d'analyses physico-chimiques.

Ces différentes observations ont permis de mettre en évidence une bonne homogénéité des compositions physico-chimiques, tant du point de vue de la composition des eaux que des assemblages minéralogiques aux différentes profondeurs. L'examen de la composition chimique des eaux a permis également de définir le métabolisme énergétique le plus favorable dans le système, qui met en œuvre un processus actif d'abattement des nitrates (dénitrification).

Dans un second temps, une partie des équipements disponibles sur la plateforme ont pu être utilisés dans le cadre de ces travaux afin de mener une expérience d'injection longue durée de chaleur dans la nappe, afin d'évaluer l'éventuelle incidence sur les paramètres physico-chimiques et microbiologiques. D'un point de vue thermique, cet essai a abouti à une augmentation significative de la température des eaux à une distance de 3 m de la sonde géothermique, avec des niveaux de température répartie inégalement selon la profondeur. Ce phénomène est étroitement lié à la nature des formations géologiques qui induit des propriétés hydrodynamiques radicalement différentes. Ainsi, les transferts de chaleur dans le compartiment marneux apparaissent principalement régit par les échanges purement conductifs, tandis que la partie sous-jacente, très perméable, est caractérisée par la présence d'un écoulement responsable d'une atténuation sensible des niveaux de température. Cet essai a été accompagné d'un suivi des principaux descripteurs physico-chimiques et microbiologiques, *via* l'élaboration d'un dispositif de prélèvement adapté aux conditions de l'essai. Les principaux résultats obtenus ne montrent aucune variation sensible des équilibres eau-roche, comme en témoigne l'évolution des indices de saturation des eaux prélevées. En revanche, une modification ponctuelle de la composition chimique de l'eau a été relevée à la fin de l'essai, coïncidant avec les niveaux de température les plus élevés. Une diminution des teneurs en nitrate, associée à la baisse du potentiel redox et la détection de sulfure a ainsi été identifiée. Malheureusement, ces observations n'ont pas pu être directement reliées au cycle de fonctionnement de l'installation géothermique en raison de la présence d'autres facteurs potentiels de variabilité.

Chapitre VI :

**Expérimentations à l'échelle
du pilote BIOTHERMEX**

Ce dernier chapitre est consacré à la description des travaux menés à l'échelle du dispositif expérimental de percolation, élaboré dans le cadre du projet BIOTHERMEX. L'objectif de cette approche est d'acquérir un jeu de données expérimentales nécessaire à la compréhension des processus réactionnels mis en jeu suite à l'application d'une perturbation thermique au niveau du milieu souterrain, dans des conditions s'apparentant aussi fidèlement que possible aux sites d'études précédemment décrits. Il s'agit notamment de compléter les observations de terrains, pour lesquelles aucune incidence notable des fluctuations de température n'a, pour l'heure, été décelée.

1. Simulations à l'échelle du site de Balandran

Le premier volet de ce chapitre se rapporte aux essais de percolation visant à reproduire l'influence de la température sur les équilibres hydrogéochimiques dans des conditions similaires à celles rencontrées au niveau du site de Balandran. A cette fin, le programme d'expérimentation s'appuie sur l'utilisation de la matrice sédimentaire récoltée au niveau du site ainsi que sur l'emploi d'une eau de composition chimique équivalente (eau reconstituée). Cette dernière condition exclut la prise en compte des phénomènes biologiques dans les processus réactionnels mis en jeu.

1.1 Essais de traçage

Avant d'entamer les séries d'expériences, une série de tests de traçage a été mise en œuvre dans le but de déterminer les principaux paramètres hydrodynamiques du milieu poreux, ainsi que pour s'assurer de la reproductibilité du protocole de garnissage des colonnes.

La figure 135 ci-dessous présente d'une part, les courbes de restitution expérimentales obtenues au niveau de 3 colonnes préparées de façon identique (débit d'injection de 5 ml/min) et d'autre part, un jeu de simulations numériques effectuées dans des conditions expérimentales identiques (débit, géométrie de la colonne, porosité), avec différentes valeurs du coefficient de dispersivité longitudinale α_L . Le calage du modèle par rapport aux courbes expérimentales est illustré en figure 136.

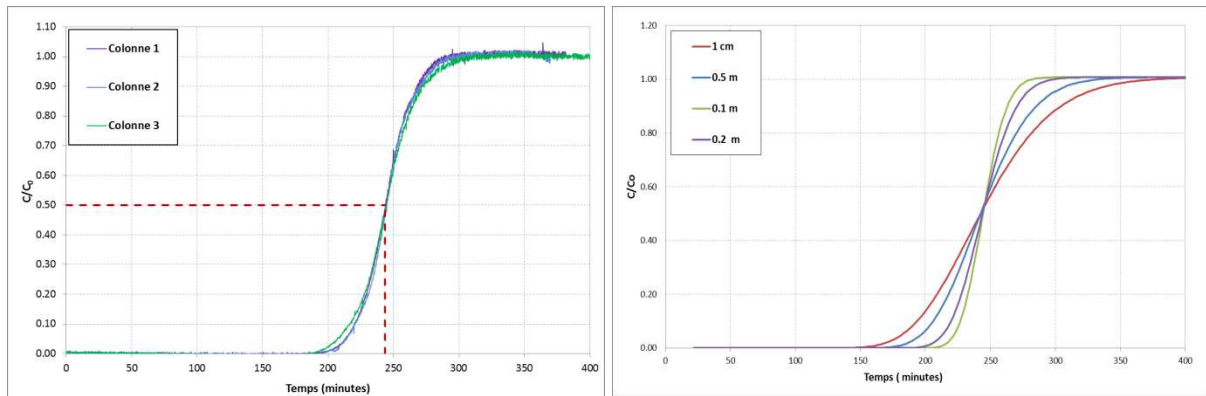


Figure 135 : Comparaison entre (i) les courbes de restitution expérimentales obtenues pour les 3 colonnes (figure de gauche) et (ii) une série de simulations numériques (figure de droite) faisant intervenir différentes valeurs de α_L .

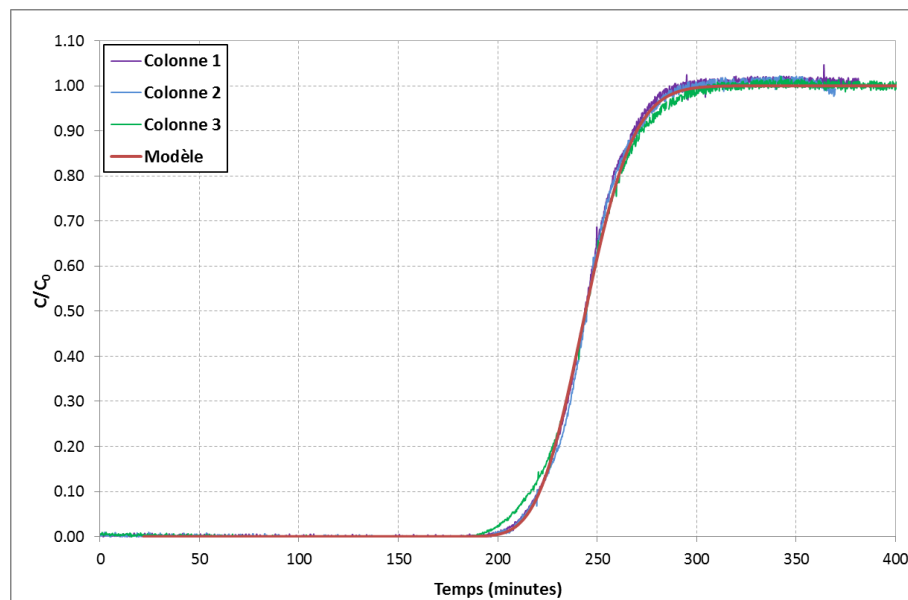


Figure 136 : Ajustement du modèle numérique aux courbes de restitutions expérimentales (calage obtenu pour une valeur de $\alpha_L=0,18 \text{ m}$)

L'examen des courbes de restitution expérimentales montre, tout d'abord, une excellente reproductibilité des essais, comme en témoigne la bonne homogénéité inter-essais des principaux paramètres caractérisant l'écoulement (Tableau 27). La porosité totale des colonnes, estimée par pesée avant et après saturation en eau des colonnes avant la mise en place des essais, se révèle être très proche du volume d'eau mobile, *i.e* participant à l'écoulement dans le dispositif.

Par ailleurs, la superposition des courbes expérimentales avec la simulation numérique permet de conclure que le modèle de convection-dispersion est parfaitement adapté pour décrire le transport hydraulique au sein des colonnes, les phénomènes de diffusion étant négligeables pour les gammes de débit (et donc de temps de séjour) considérées.

Tableau 27 : Principaux paramètres obtenus à l'issue des tests de traçages sur les 3 colonnes

	Temps séjour (min)	Porosité totale (%)	Volume théorique (L)	Volume poreux mobile	
Colonne 1	255.2	32.5	1.274	1.276 L	100.16%
Colonne 2	251.6	32.7	1.282	1.258 L	98.14%
Colonne 3	248.6	32.1	1.258	1.243 L	98.78%

En conclusion, ces investigations préliminaires ont permis de répondre pleinement aux objectifs fixés : le régime d'écoulement peut être ainsi appréhendé avec un excellent degré de confiance et la procédure de remplissage des colonnes sera considérée, pour la suite des essais, comme reproductible.

1.2 Tests de stockage thermique

Avant de débiter les expérimentations en condition dynamique, une série d'essais a été menée en condition statique (de type « batch ») dans le but d'appréhender la réactivité du système chimique dans la gamme de température susceptible d'être appliquée au cours des essais. Par ailleurs, cette série d'expérimentations vise également à fournir des éléments de réponse quant aux conséquences éventuelles d'un stockage d'énergie thermique en aquifère, lorsque les conditions hydrogéologiques le permettent (faible à très faible vitesse de circulation de la nappe).

La méthodologie adoptée est brièvement explicitée : après la mise en contact entre la solution d'alimentation (eau de Balandran reconstituée) et le milieu poreux (sédiment de Balandran), l'atteinte de l'équilibre chimique étant appréciée par le suivi des paramètres physico-chimiques du fluide en sortie de colonne (l'exemple du suivi de la conductivité et des teneurs en calcium est donnée en figure 137), la circulation du fluide est interrompue, grâce à un jeu de vannes disposé de part et d'autre des colonnes. Les colonnes sont ensuite disposées dans une enceinte climatique à une température donnée (14, 30 ou 40°C) pendant un laps de temps fixé (7 ou 30 jours).

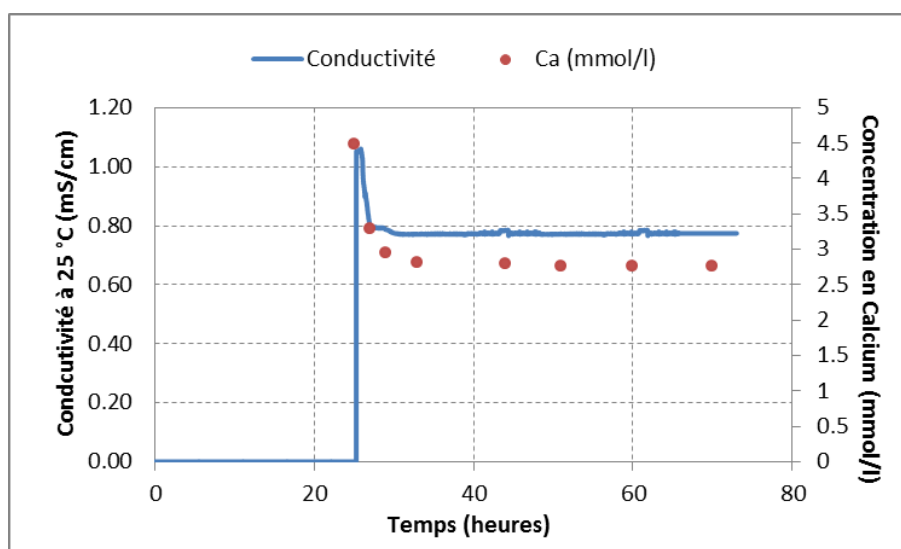


Figure 137 : Evolution de la conductivité électrique et des teneurs en calcium en sortie de colonne durant la phase de saturation, suivie de la mise à l'équilibre chimique.

Les résultats des incubations effectuées aux 3 températures 14, 30 et 40°C, durant une période de 7 et 30 jours, sont donnés dans le tableau 28. Sont reportés les résultats des dosages des principales espèces chimiques, ainsi que les calculs thermodynamiques, permettant d'en déduire les valeurs des balances électriques (E%) et les indices de saturation des eaux vis-à-vis de différentes phases minérales ou de la pression partielle en CO₂.

Le premier constat que l'on peut émettre se rapporte aux valeurs de pH, qui ont augmentées dans l'ensemble des essais. Rappelons que, théoriquement, le pH d'une solution quelconque diminue avec la température. Dans le cas présent, les pH atteints en fin d'incubation présentent plus d'une unité pH de différence en comparaison avec la valeur de la solution initiale. Ce phénomène est directement imputable au dégazage de la solution, initialement sursaturée en CO₂ ($P_{CO_2}=10^{-1,79}$), au cours de l'essai malgré le confinement dans les colonnes. Les indices de saturation vis-à-vis du CO₂ en fin d'incubation sont proches des valeurs caractérisant l'état d'équilibre avec l'atmosphère (*i.e* de $P_{CO_2}=10^{-3,5}$ ou $\log P_{CO_2} = -3,5$).

Les résultats d'analyses des incubations effectuées à 14°C ne présentent pas, en première approche, de différences notables par rapport à la composition initiale. Hormis les valeurs de pH, seules les teneurs en aluminium et en carbone organique total (COT) montrent une augmentation significative, étant donné que ces éléments n'étaient pas dosables (teneur inférieure à la LQ) dans la solution initiale.

La tendance principale pour les incubations réalisées à 30 et 40°C correspond (i) à une diminution des teneurs en calcium, et magnésium et de l'alcalinité, d'autant plus marquée que

la température ou le temps d'incubation est conséquent, et (ii) à une augmentation des concentrations en silice dissoute, aluminium et le COT.

		T ₀	14 °C		30 °C		40 °C	
			7 jrs	30 jrs	7 jrs	30 jrs	7 jrs	30 jrs
	pH	7	8.1	8.2	8.1	8.19	7.98	7.92
	Conductivité	1122	1131	1145	1125	1063	1042	998
Cations	Ca	2.74	2.72	2.70	2.59	2.14	2.08	1.93
	Mg	0.37	0.36	0.37	0.31	0.26	0.26	0.23
	Na	5.42	5.27	4.86	5.11	4.86	5.34	5.20
	K	0.05	0.08	0.09	0.03	0.05	0.04	0.04
	SiO ₂	0.24	0.26	0.25	0.36	0.41	0.67	0.70
	Al	0	1.67E-05	5.37E-05	1.91E-04	2.86E-04	2.E-04	3.E-04
	Fe	0	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ
Anions	SO ₄	2.50	2.49	2.39	2.54	2.39	2.72	2.64
	Alcalinité	3.2	3.17	3.14	2.9	2.45	2.31	2.22
	Cl	2.02	2.13	2.21	2.18	2.21	2.41	2.30
	NO ₃	0.66	0.66	0.66	0.62	0.55	0.52	0.39
COT		0	ND	2.2	2.9	2.9	3.8	ND
E (%)		3.92	2.78	1.5	0.81	-2.2	-3.26	-3.28
Indices de saturation	Calcite	-0.389	0.688	0.685	0.841	0.798	0.698	0.711
	Dolomite	-1.561	0.585	0.594	0.977	0.900	0.789	0.795
	Quartz	0.248	0.277	0.260	0.224	0.278	0.375	0.390
	Calcédoine	-0.046	-0.017	-0.034	-0.056	-0.002	0.104	0.120
	P _{CO2}	-1.792	-2.909	-2.912	-2.860	-3.006	-2.800	-2.898

Tableau 28 : Evolution des différents paramètres physico-chimiques au cours des incubations. Les augmentations ou les diminutions des paramètres (pH, conductivité) et des teneurs en espèces chimiques sont indiquées par des couleurs vertes et rouges respectivement. (ND = Non déterminé ; LQ = limite de quantification ; T₀= composition initiale ; teneurs en mmol/L ; conductivité en $\mu\text{S/cm}$)

La diminution des teneurs en calcium, en magnésium et de l'alcalinité traduit un phénomène de précipitation de minéraux carbonatés, probablement sous la forme de calcite (CaCO₃) et de dolomite (Ca_{0.5} Mg_{0.5}CO₃). L'examen des quantités de calcium et magnésium soustraites de la solution révèle que la calcite est vraisemblablement la phase néoformée la plus importante ($\Delta\text{Ca/Mg}$ soustraite de la solution compris entre 2,50 et 6,25). Cette précipitation est également confirmée, dans la plupart des cas, par de plus faibles valeurs de conductivité électrique enregistrées, en comparaison avec la valeur initiale. Ce phénomène n'est toutefois

pas observable dans le cas de l'incubation réalisée à 30°C pendant 7 jours, pour laquelle une erreur de mesure est suspectée.

On remarque que cette précipitation de phases minérales carbonatées n'est pas directement induite par le dégazage de sa solution, malgré la forte hausse des indices de saturations qui en résulte. Le système chimique se maintient, ainsi, à un degré modéré de sursaturation (IS voisin de 0,70 et de 0,60 pour la calcite et la dolomite respectivement) vis-à-vis de ces minéraux sans montrer de signe d'évolution particulier, comme en témoigne les valeurs acquises au terme de 30 jours d'incubation, à la température proche de celle rencontrée sur site (14°C).

L'élévation de la température, couplée au dégazage de la solution, génère une nette hausse des indices de saturation, qui se traduit par une précipitation de minéraux carbonatés, dont l'ampleur est fonction du temps de séjour. A titre d'exemple, la quantité d'ions calcium et magnésium soustrait de la solution à une température de 40 °C passe de 0,78 mmol/l à 0,81 mmol/l pour des temps de séjour de 7 et 30 jours respectivement. Pour l'alcalinité, les valeurs sont de 0,89 et 0,98 mmol/l pour des temps d'incubation de 7 et 30 jours, et se révèlent être du même ordre de grandeur que les quantités d'ions alcalino-terreux décomptés de la solution.

Tout comme dans le cas des expérimentations à 14°C, le système se maintient, au terme des temps d'incubations, à un certain niveau de sursaturation vis-à-vis des minéraux carbonatés, compris entre 0,70 et 0,84 pour la calcite, et entre 0,79 et 0,98 pour la dolomite.

L'examen de la littérature révèle que ce phénomène de sursaturation est communément observé dans les eaux naturelles, et dépend d'une combinaison de multiples facteurs. Ne seront détaillés ci-dessous que les facteurs servant à appuyer les interprétations dans le cadre de ces essais :

- a) La présence de substances organiques, en particulier les acides faibles, et les ions phosphates ou polyphosphates dont l'effet inhibiteur (anti-tartre ou anti-calcaire) résulte de la conjonction de 2 principaux facteurs. Le premier niveau d'inhibition est lié à la présence de groupements anioniques à la surface de ces composés conduisant à la formation de complexes avec les ions Ca^{2+} , qui tendent à diminuer l'activité des ions Ca^{2+} en solution (Stumm et Morgan, 1996 ; Brons *et al.*, 1991). Le second niveau d'inhibition se rapporte à la fixation de ces parties anioniques au niveau de la surface réactive des dépôts de carbonates en cours de croissance, modifiant la charge de surface, empêchant ainsi le minéral de fixer des ions Ca^{2+} supplémentaires (Legrand et Leroy, 1995 ; Lin et Singer, 2006).

- b) La présence de Mg^{2+} qui influence la solubilité de la calcite, via son incorporation dans la structure cristalline, avec pour conséquence, la formation de calcite magnésienne, qui détient une plus grande solubilité par rapport à la calcite (Mackenzie *et al.*, 1983). Par ailleurs, l'adsorption des ions Mg^{2+} sur les sites de croissance cristalline de la calcite a pour effet une inhibition des cinétiques de précipitation probablement en raison de leur plus fort degré d'hydratation en comparaison avec les ions Ca^{2+} (Mucci, 1983 ; Mucci et Morse, 1984) ou d'une manière plus générale, par un phénomène d'empoisonnement de la surface cristalline, référé dans la littérature sous le terme de « crystal poisoning » (Reddy et Wang, 1980).
- c) La présence d'ions SO_4^{2-} qui, en se substituant aux ions CO_3^{2-} , abaissent significativement les cinétiques de croissances du minéral (Busenberg et Plummer, 1985)
- d) Contraintes cinétiques : hormis les effets d'inhibition, il est généralement observé que, plus la composition de l'eau se rapproche de l'état d'équilibre, plus faible est la cinétique de précipitation. La durée nécessaire pour atteindre l'équilibre est variable selon le système chimique considéré, mais elle peut être considérable.

Comme évoqué précédemment, la seconde tendance qui se dégage des résultats obtenus correspond à une déstabilisation des phases minérales silicatées de l'assemblage minéralogique, qui comprend les polymorphes de la silice (quartz et calcédoine), les feldspaths (albite, microcline), ainsi que le groupe des micas/phylosilicates (muscovite, illite).

Comme pour le phénomène de précipitation, les analyses révèlent que la déstructuration est d'autant plus importante que la température et le temps de séjour sont élevés. Cela se traduit par une augmentation des teneurs en silice dissoute, ainsi qu'en ions aluminium. A noter que les ions aluminium, initialement absents de la solution initiale, se retrouvent dans les eaux prélevées au terme des incubations effectuées à 14°C. Cette présence indique la mise en équilibre des eaux, initialement sous-saturées, avec les minéraux de la formation.

D'après la figure 138, extraite des modélisations effectuées dans le chapitre III, on remarque que l'élévation de température induit une diminution des indices de saturation des minéraux silicatés qui tend à dissoudre les phases minérales concernées jusqu'à atteindre l'équilibre. On constate qu'il faut atteindre des températures supérieures à 35 °C pour induire une sous-saturation des eaux vis-à-vis du quartz, ce qui indique que l'augmentation des teneurs en

silice dissoute ne provient vraisemblablement pas de la dissolution de cette phase minérale. En revanche, les calculs d'équilibres thermodynamiques montrent que les eaux sont initialement sous-saturées vis-à-vis de la calcédoine, phénomène qui tend à s'amplifier avec l'application d'une température plus élevée. L'examen des indices de saturation vis-à-vis de la calcédoine au terme des incubations montre que ces derniers sont proches de zéro voire légèrement supérieurs. Ces résultats révèlent que, contrairement à aux phases minérales carbonatées, l'équilibre avec les phases silicatées a été atteint. On en conclut que la solubilité des formes silicatées est contrôlée par la calcédoine et que les effets cinétiques semblent moins contraignants que pour les équilibres vis-à-vis des phases carbonatées.

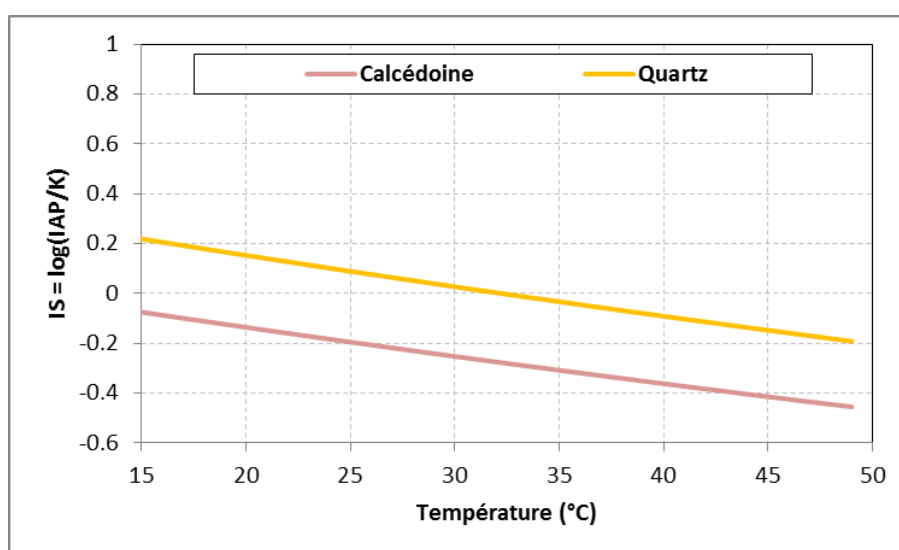


Figure 138 : Evolution de la solubilité des phases minérales en fonction de la température comme révélées par les valeurs des indices de saturation

Enfin, le dernier paramètre qui montre une tendance d'évolution significative concerne les teneurs en COT de la solution. L'eau d'alimentation étant dépourvue de toute trace de substance organique (eau reconstituée), on remarque que les eaux analysées en fin d'incubations présentent des teneurs en COT comprises entre 2,2 et 3,8 mmol/L, teneurs qui semblent être liées aux niveaux de température appliqués. Ces résultats sont cohérents avec les travaux de Brons *et al.* (1991), qui ont mis en évidence, lors d'incubation d'eau souterraine au contact de sédiments, une mobilisation de la fraction organique contenue dans la matrice sédimentaire et ce, dans une gamme de température comprise entre 10 et 75°C. Les teneurs en COT en solution sont ainsi d'autant plus élevées que la température ou la teneur initiale en carbone organique du sédiment est importante.

1.3 Essais en condition dynamique

A l'issue des essais en batch, qui ont permis de préciser la tendance d'évolution du système, une série d'expérimentations en condition dynamique a été réalisée. Afin de faciliter les comparaisons, les mêmes paramètres ont été conservés durant ces essais (composition de l'eau d'alimentation, rapport pondéral du liquide sur le solide, porosité, mode de préparation des colonnes).

1.3.1 Résultats des essais à 28°C

1.3.1.1 Suivi de la composition de l'influent

La validité et la pertinence de l'essai passe, tout d'abord, par la nécessité de maintenir les propriétés physico-chimiques de la solution d'alimentation. La figure 139 présente un exemple de suivi des principaux paramètres réalisé par des mesures en continue (pH, température) accompagnées de mesures ponctuelles journalières (calcium, magnésium, alcalinité, sulfate, nitrate). Les résultats font ressortir une grande stabilité des propriétés de la solution et permettent d'exclure tout biais lié à l'évolution de l'influent. Les paramètres qui ne figurent pas sur les graphiques (NO_3^- , SO_4^{2-} , Mg^{2+}) présentent également le même profil d'absence d'évolution.

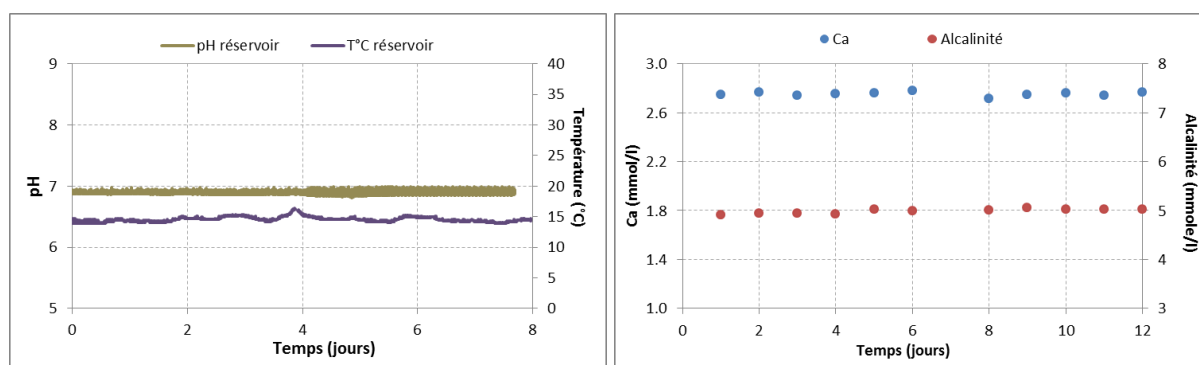


Figure 139 : Exemple de suivi des caractéristiques de l'eau d'alimentation : pH, température, alcalinité, et calcium

1.3.1.2 Suivi de la composition du fluide en sortie de colonne

La percolation a été réalisée à un débit d'injection de 1,8 ml/min, qui correspond à une vitesse de circulation de 4,17 cm.h⁻¹, soit 1 m.jrs⁻¹. Le temps de contact entre la phase mobile et le sédiment est donc de 12h. L'évolution du débit en sortie de colonne a été contrôlée au moyen

d'une balance électronique et n'a pas montré de signe de variation sensible durant l'essai (données non montrées). Sur la figure 140 sont représentées les évolutions, sur les 8 premiers volumes d'eau porale, des principaux paramètres physico-chimiques mesurés ou dosés en sortie de colonne, à savoir : le pH, la conductivité, la température au sein de la colonne, et les teneurs en Ca, Si, et alcalinité.

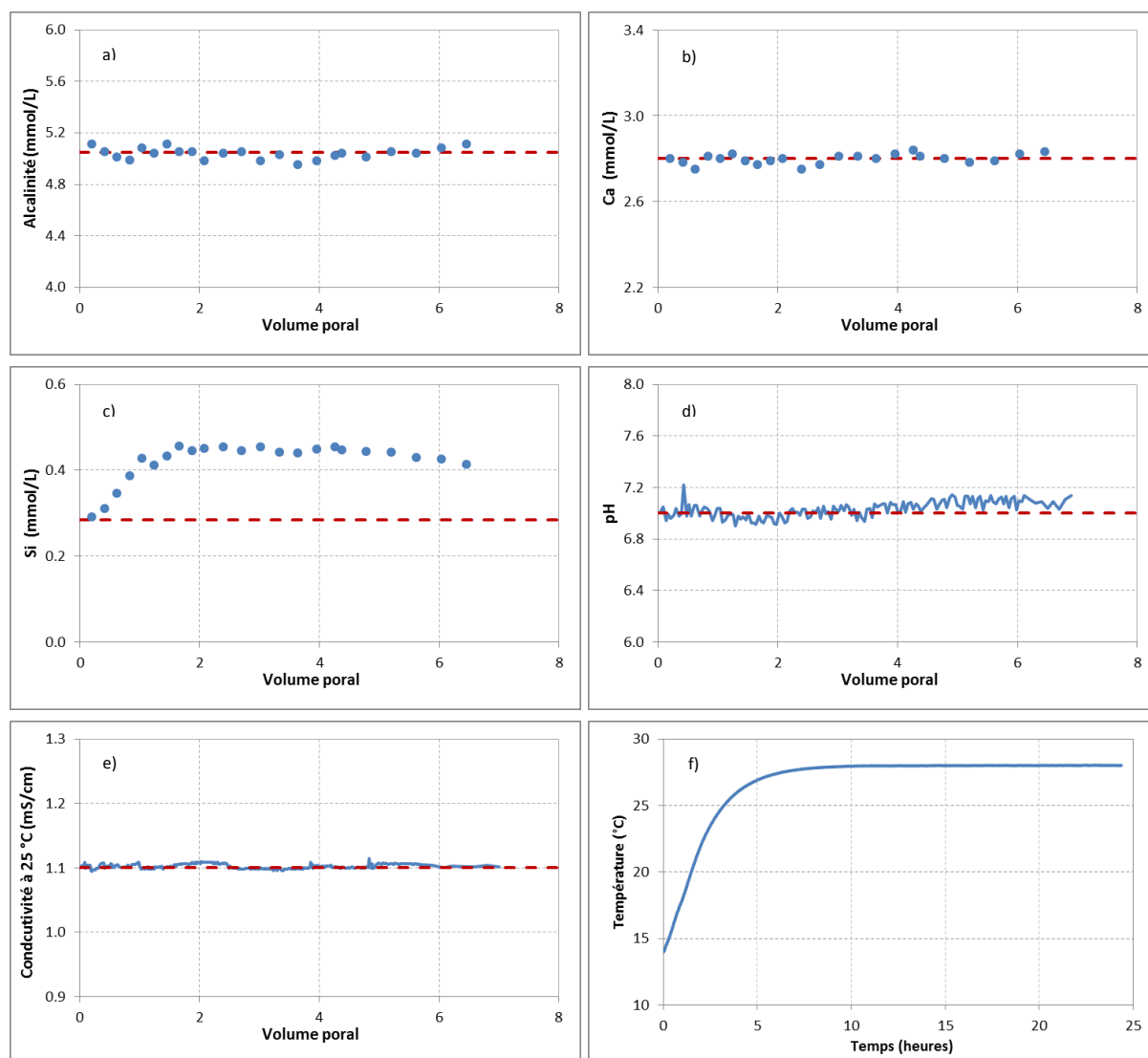


Figure 140 : Evolution à 28°C des concentrations sur les 8 premiers volumes de pores des paramètres suivants : a) alcalinité, b) calcium, c) silice dissoute, d) pH, e) conductivité électrique à 25°C et f) évolution de la température au sein de la colonne lors de la montée en température ; les teneurs initiales de l'eau d'alimentation sont reportées sur chaque graphique par un trait pointillé horizontal.

La lecture de ces graphiques montre, qu'hormis les teneurs en silice dissoute, aucune variation notable des différents paramètres n'a été enregistrée, ceux-ci se maintenant à des valeurs proches, aux incertitudes analytiques près, des valeurs initiales. En ce qui concerne les concentrations en silice dissoute, on remarque que celles-ci s'accroissent progressivement en

réponse à l'augmentation de température puis, tendent à se stabiliser à des valeurs proches de 0,45 mM, correspondant à un état proche de l'équilibre ($IS = 0,03$ vis-à-vis de la calcédoine). On en conclut donc que la mise à l'équilibre avec les formes silicatées s'opère très rapidement jusqu'à atteindre l'équilibre.

A noter que la même expérience a été conduite à 14°C, à titre de condition de référence. Les résultats obtenus montrent une excellente correspondance entre les concentrations des différents paramètres mesurés en sortie de colonne avec les concentrations initiales. Les résultats de ces deux essais confirment ce qui a été constaté sur le terrain : l'absence d'altération des paramètres physico-chimiques de l'eau qui percole dans la matrice de Balandran, lorsque le système subit une augmentation de température inférieure à 30°C.

1.3.2 Résultats des essais à 45°C

Les résultats obtenus pour la percolation à 45°C, pour une vitesse de circulation équivalente à celle à 28°C (et à 14°C), sont reportés dans la figure 141. Tout comme l'essai précédent, l'accroissement de la température se traduit par une augmentation très rapide des teneurs en silice dissoute, jusqu'à atteindre une valeur de 0,67 mM au second volume d'eau porale, correspondant à l'équilibre de l'eau prélevée vis-à-vis de la silice peu cristalline, *i.e* la calcédoine ($IS = 0,04$). Les teneurs diminuent ensuite progressivement jusqu'à atteindre une valeur proche de 0,40 mM en fin d'expérience (7 à 8 volumes de pores). Cette diminution traduit certainement l'épuisement progressif de phases facilement mobilisables au sein de la matrice (*i.e* silice réactive, telle que la calcédoine ou la silice microcristalline).

En ce qui concerne l'évolution des autres paramètres, on remarque, qu'à la différence de l'essai mené à 28°C, l'application d'une température plus élevée se traduit par une diminution passagère et concomitante du pH, de l'alcalinité, de la conductivité et de la concentration en Ca^{2+} au niveau des premiers volumes de pores. Pour l'ensemble des paramètres cités, la chute la plus importante est enregistrée pour le premier volume de pores, puis les valeurs réaugmentent progressivement jusqu'à atteindre leurs valeurs initiales pour un volume d'eau poral compris entre 1,8 (pour la conductivité) et environ 4 (pour l'alcalinité). A souligner que les teneurs en Mg^{2+} suivent le même comportement (données non montrées) que celles relevées pour les ions Ca^{2+} .

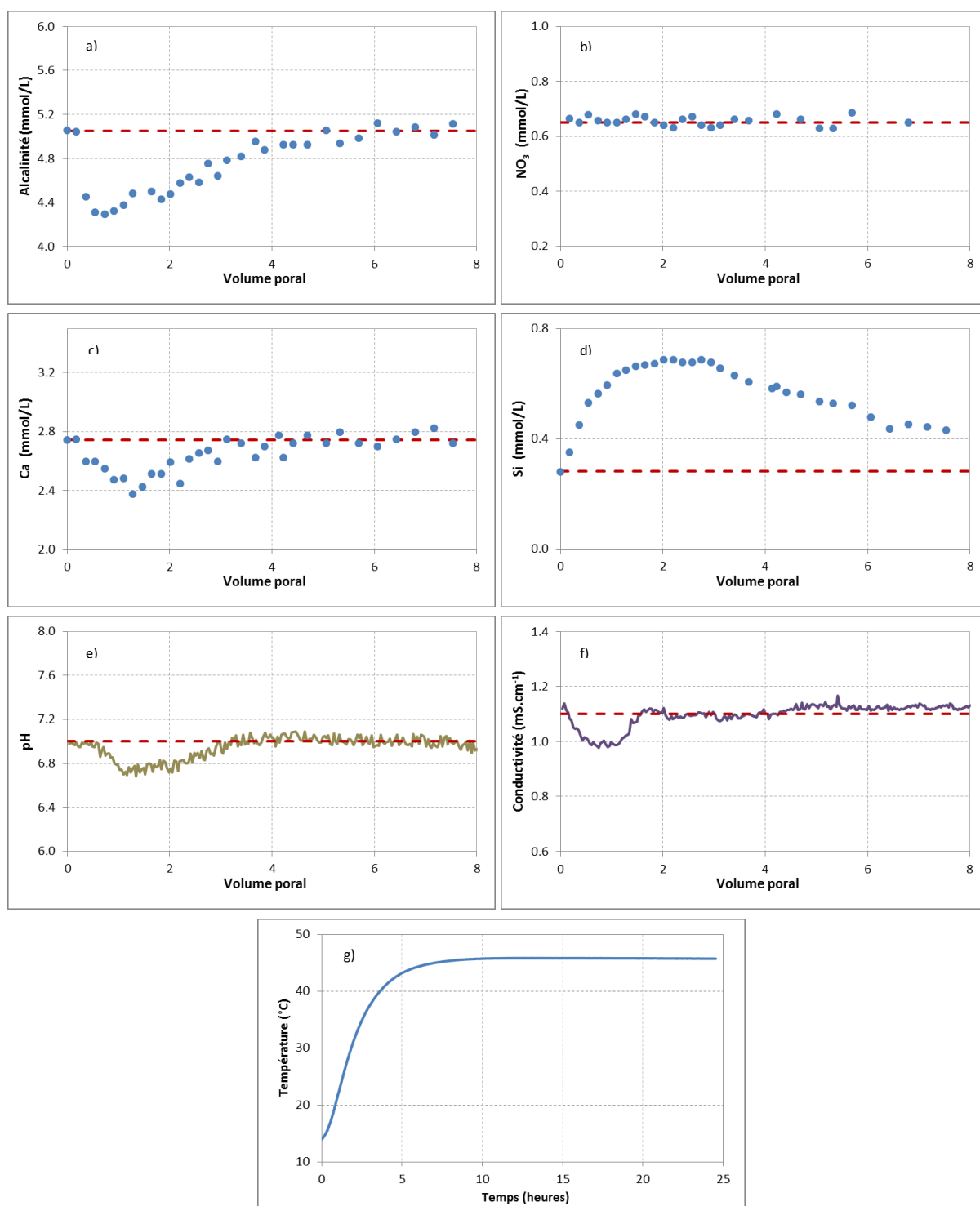
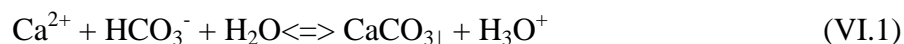


Figure 141 : Evolution à 45°C sur les 8 premiers volumes de pores des paramètres suivants : a) alcalinité, b) nitrate, c) calcium, d) silice dissoute, e) pH, f) conductivité électrique à 45°C et g) température au sein de la colonne lors de la montée en température ; les teneurs initiales de l'eau d'alimentation sont reportées sur chaque graphique par un trait pointillé horizontal.

Ce phénomène trouve son explication dans la précipitation de minéraux carbonatés, comme l'atteste l'exemple de la calcite ci-dessous :



Si cette réaction de précipitation suffit à rendre compte du phénomène responsable des diminutions observées (diminution de Ca^{2+} , de l'alcalinité et du pH), elle ne permet en revanche pas d'expliquer les raisons pour lesquelles ce phénomène se manifeste uniquement en tout début de percolation et ne perdure pas tout au long de l'essai.

La revue de la littérature montre que ce phénomène a déjà été rencontré lors d'essais en colonne dans le cadre de travaux portant sur stockage d'énergie thermique en aquifère, pour des températures supérieures à 60°C (Griffioen et Appelo, 1993 ; Bonte *et al.*, 2012). Alors que Bonte *et al.* exposent une approche purement descriptive de leurs essais, les travaux conduits par Griffioen et Appelo se révèlent être remarquables et extrêmement complets : la précipitation de carbonates en début de réaction est ainsi attribuée, pour leur essai, à la présence de fer provenant de la solution d'alimentation, qui provoque une rapide précipitation sous forme de carbonate de fer FeCO_3 (IS sidérite > 2). Une fois le fer totalement épuisé de la solution, les cinétiques de précipitation ralentissent considérablement, expliquant la remontée progressive des différents paramètres jusqu'à atteindre les valeurs correspondant à la solution initiale. Le maintien des forts degrés de sursaturations vis-à-vis des carbonates (IS > 1 pour la calcite à 90°C) a été attribué à la présence d'acides organiques et/ou de phosphates, inhibant les cinétiques de précipitation.

Toutefois, cette phénoménologie décrite par Griffioen et Appelo ne peut être complètement étendue à nos essais puisqu'aucune teneur en fer dissous n'a été détectée dans la solution récoltée en bout de ligne (mesures ponctuelles) et car la précipitation de la sidérite est peu probable à 40°C, même en sursaturation, ce phénomène étant principalement rencontré à des températures plus élevées (> 60°C) (Ellis, 1970).

En revanche, deux autres pistes existent pour expliquer le scénario du retour aux conditions initiales du fluide de sortie de colonne, après la diminution passagère et concomitante du pH, du calcium et de l'alcalinité.

- La première est relative aux mesures du COT, qui sont dans notre cas éparées mais, comme dans le cas des expérimentations en batch, les teneurs sont plus élevées à forte température. Cette mobilisation du carbone organique interviendrait donc peu après le

début de l'expérience, *i.e* pour un volume de pores supérieur à 1, inhibant les cinétiques de précipitation des carbonates par les mécanismes décrit précédemment, conduisant ainsi au retour des différents paramètres à leurs valeurs initiales.

- La seconde piste, est relative aux (ortho-) phosphates. Même si ces derniers n'ont pas été suivis au cours de nos essais, leur présence est fortement suspectée, puisque la matrice minérale en contient 449 mg/kg de P_2O_5 (cf. Chapitre III). Le rôle des phosphates dans l'inhibition de la précipitation de la calcite est bien connu et a été décrit dans la section précédente.

Ainsi, le mécanisme proposé pour décrire la séquence réactionnelle est le suivant : l'application d'une température de 40°C génère une sursaturation des phases minérales carbonatées (calcite et calcite magnésienne) qui précipitent au contact des phases solides présentes au sein de la colonne (nucléation hétérogène), induisant, par conséquent, la diminution du pH, de la dureté totale et de l'alcalinité selon la réaction $Ca^{2+} + HCO_3^- + H_2O \rightarrow CaCO_3\downarrow + H_3O^+$. En parallèle, l'eau d'alimentation, qui ne contient ni phosphate, ni carbone organique, dissout progressivement ces espèces qui se trouvent dans la matrice de la colonne. Lorsque ces espèces atteignent un certain niveau de concentration, elles commencent à jouer leur rôle d'inhibiteur de précipitation de la calcite en diminuant l'activité des ions Ca^{2+} en solution (complexation) ou via des phénomènes d'adsorption sur la surface des sites de croissance actifs de calcite qui aboutit au blocage de la croissance. L'apparition progressive de ce phénomène justifierait ainsi la ré-augmentation du pH et des teneurs en calcium, en alcalinité dans le fluide de sortie de colonne.

2. Simulations à l'échelle du site de la Mairie du 8^e arrondissement (Lyon)

Le second volet de ce chapitre se rapporte au programme d'essai mis en œuvre en complément du suivi opéré sur le site de la Mairie du 8^e arrondissement à Lyon. Le bilan des observations de terrain, à l'échelle d'un cycle hydrogéologique, n'ont pas permis de mettre en évidence d'effet préjudiciable au niveau des différents paramètres suivis malgré un impact thermique notable. Il convient donc de vérifier si ces observations se confirment en conditions parfaitement paramétrées. Ce programme d'expérimentation se distingue du précédent par l'utilisation d'eau souterraine prélevée directement sur site, permettant l'intégration des paramètres biologiques (microflore endogène).

2.1 Essais de traçage

Comme précédemment, la série d'essai débute par une phase préliminaire de caractérisation des propriétés de l'écoulement et de vérification de la reproductibilité de la phase de préparation des colonnes.

La démarche employée reste rigoureusement identique à celle décrite dans les sections précédentes. A noter toutefois que la procédure de reproductibilité n'a été testée que sur 2 colonnes, en raison de la survenue de problèmes d'acquisition lors de la mise en place du 3^e essai de traçage. Les résultats obtenus, qui illustrent la comparaison entre les courbes expérimentales et la simulation PHREEQC en 1 dimension, pour un débit d'injection de 1,95 ml/min, sont reportés en figure 142.

La comparaison des courbes de restitution expérimentale avec celles issues du modèle numérique montre une bonne superposition même si une certaine dissymétrie des courbes expérimentales est visible sur la fin de l'essai, c'est-à-dire à partir de $t=10h$. Celle-ci engendre une plus grande dispersion du signal en comparaison avec le modèle mais ce phénomène sera considéré sans conséquence pour la suite, compte tenu du fait qu'il ne semble pas affecter de façon notable les temps de parcours moyen (*i.e* temps correspondant à $C/C_0=0,5$).

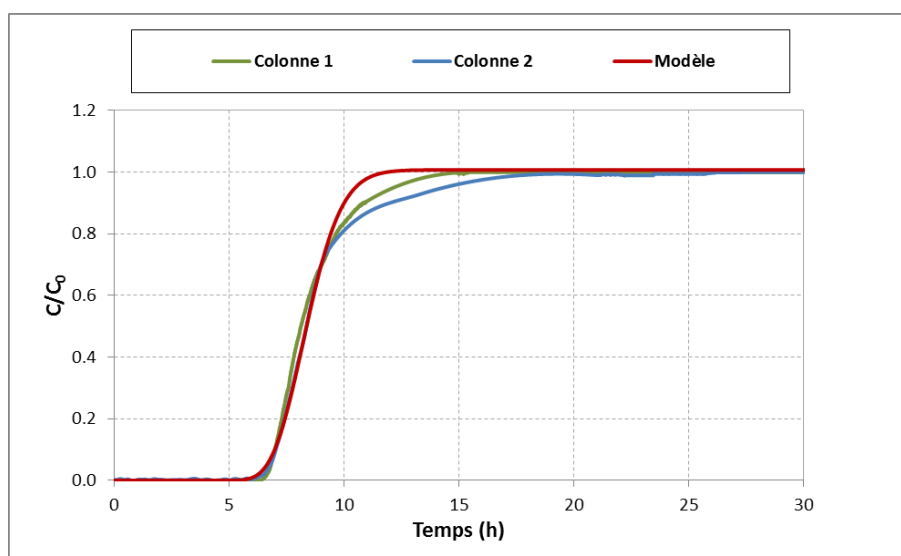


Figure 142 : Ajustement du modèle numérique aux courbes de restitutions expérimentales (calage obtenu pour une valeur de $\alpha_L=0.5$ m)

D'après le tableau 29, il est possible de déduire que (i) le volume poreux efficace est principalement constitué de la fraction mobile (supérieur à 95%) et que (ii) le transport des solutés s'effectue par le phénomène de convection-dispersion.

Tableau 29 : Principaux paramètres obtenus à l'issue des tests de traçages sur les colonnes

	Temps de séjour	Porosité totale		Volume poreux mobile	
	(min)	Volume (L)	%	L	%
Colonne 1	493.80	0.993	25.31	0.963	96.93
Colonne 2	502.80	0.979	24.93	0.980	100.20

2.2 Essais en condition dynamique

2.2.1 Considérations méthodologiques

Préalablement au lancement des essais, une procédure de nettoyage et désinfection du circuit et de tout matériel pouvant se trouver en contact avec le fluide a été mise en œuvre. Une solution aqueuse d'alcool à 70 % est tout d'abord injectée en continu pendant une période de 24 h, puis le circuit est ensuite rincé à l'eau distillée durant une période équivalente. Les colonnes sont, quant à elles, stérilisées par une série de 3 autoclavages successifs (3 cycles de 1 heure à 110°C à 48 h d'intervalle). Chaque colonne est ensuite saturée et «ensemencée»

avec l'eau du site (prélevée lors de la campagne de novembre 2011, *i.e* environ 10 jours avant le lancement des essais) comprenant la microflore endogène. Le débit d'injection est fixé 2 ml.min^{-1} , correspondant à une vitesse réelle d'écoulement de $6,1 \text{ cm.h}^{-1}$ (soit environ $1,5 \text{ m.jrs}^{-1}$) et un temps de contact réactionnel de 8,2 h.

Les aliquotes dédiés à l'analyse des paramètres microbiologiques sont prélevés ponctuellement au moyen d'un dispositif de collecte spécialement dédié (se reporter au chapitre II pour davantage de détails).

2.2.2 Essai de percolation à 15°C

Dès la phase de saturation de la colonne et, malgré un brassage continu couplé à une aération de l'eau d'alimentation (concentration en oxygène dissous de 100%), on relève, en sortie de colonne, une chute nette de la concentration en oxygène dissous ($< 0,5 \text{ mg.L}^{-1}$) ainsi que du potentiel redox, faisant ainsi basculer le système en condition quasi-anaérobie. Ce phénomène est imputable à l'activité bactérienne qui est perceptible dès les premières heures de l'essai. En l'absence d'oxygène dissous et dans ces conditions, l'accepteur d'électrons le plus énergétiquement favorable pour le métabolisme bactérien devient donc le nitrate.

Rappelons que la dénitrification est un processus de respiration biologique qui, lorsqu'elle est complète, aboutit à la formation d'azote gazeux (N_2) *via* quatre séquences réactionnelles ($\text{NO}_3^- \rightarrow \text{NO}_2^- \rightarrow \text{NO} \rightarrow \text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2$). Le suivi chimique de cette activité microbienne spécifique, *via* le dosage des principales espèces chimiques impliquées dans la chaîne réactionnelle, constituera donc un reflet de l'activité biologique.

2.2.2.1 Quantification de l'abattement des nitrates

Comme évoqué dans le paragraphe précédent, le démarrage de l'essai est caractérisé par une diminution immédiate et progressive des teneurs en nitrate par rapport à celle de la solution d'injection (Figure 143). Les concentrations passent ainsi de $0,78 \text{ mM}$ à environ $0,32 \text{ mM}$ à l'issue d'une période d'environ 8h, correspondant à un volume de pore. Les teneurs se stabilisent ensuite aux alentours de $0,32 \text{ mM}$ tout au long de l'essai. A l'inverse, les ions nitrites (NO_2^-), indétectables dans la solution d'alimentation, voient leurs concentrations

augmenter au cours du temps, pour atteindre des valeurs qui se stabilisent au-delà du premier volume de pore.

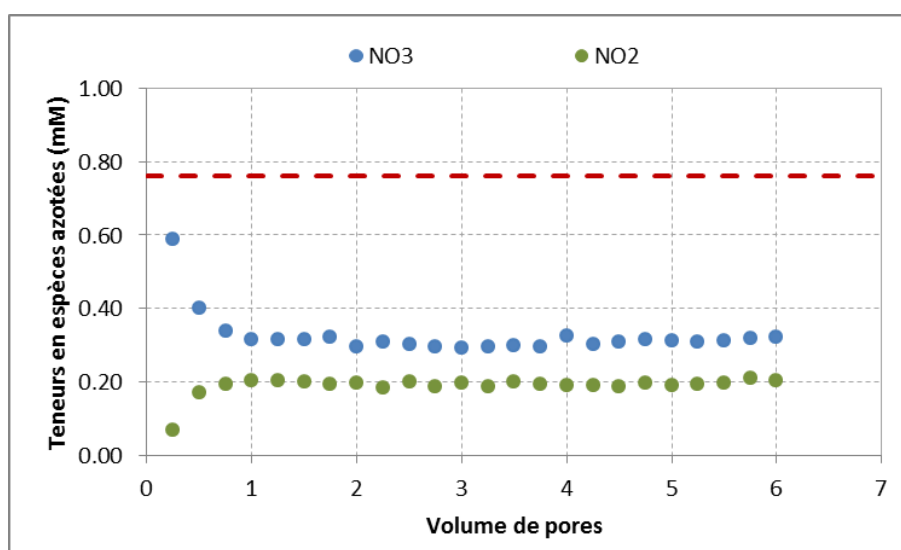


Figure 143 : Evolution des teneurs en NO_3^- et NO_2^- en fonction du volume d'eau porale. Les teneurs initiales en NO_3^- sont indiquées par un trait pointillé horizontal

L'abattement des nitrates lors du transfert réactif dans la colonne par une réduction en NO_2 est ainsi constaté. Cependant la perte en azote nitraté est supérieure à la production de NO_2 , indiquant la présence d'autres espèces réduites (N_2O , NO , N_2). A partir de ces données expérimentales, il est donc possible de calculer la cinétique de réduction dissimulatrice des nitrates au cours du temps (ou du Volume d'eau porale correspondant), à l'aide de la relation suivante :

$$\frac{d\text{NO}_3}{dt} = \frac{[\text{NO}_3^-]_{\text{init}} - [\text{NO}_3^-]_{\text{mes}}}{t_s} \quad (\text{VI.2})$$

Avec : $[\text{NO}_3^-]_{\text{init}}$ = teneur initiale en nitrate ; $[\text{NO}_3^-]_{\text{mes}}$ = teneur en nitrates mesurées et t_s = temps de séjour dans la colonne.

Les cinétiques de réduction des nitrates ainsi calculées sont reportées dans la figure 144 ci-dessous. Il en ressort que la cinétique de réduction des nitrates dans les conditions de l'essai (débit d'alimentation et teneur en nitrate dans la solution d'alimentation constants) augmente pendant une première phase ($V_p < 1$) jusqu'à atteindre un plateau au-delà duquel les cinétiques demeurent quasi-constante ($V_p > 1$).

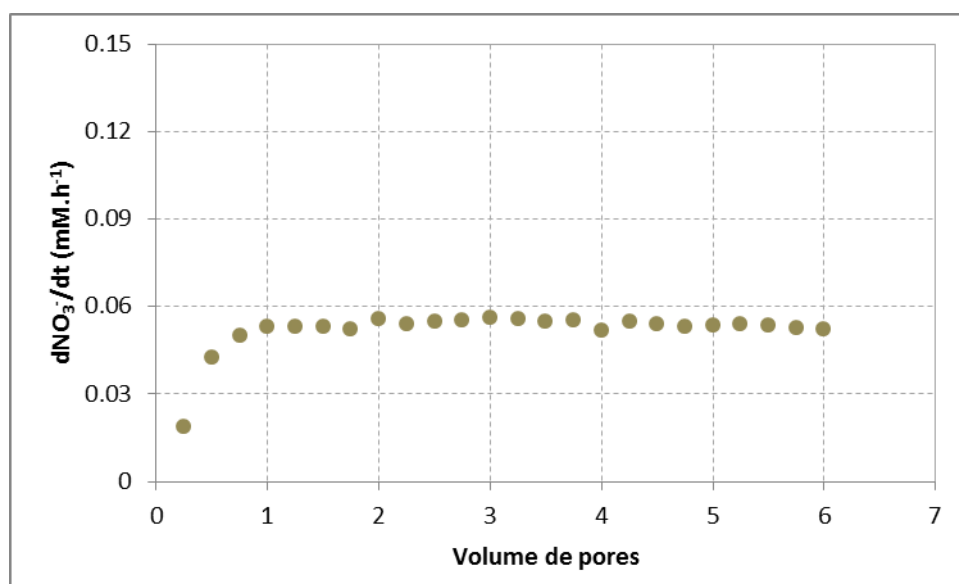
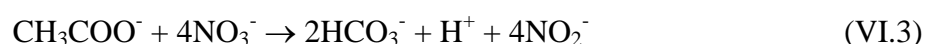


Figure 144 : Cinétique de réduction dissimulatrice des nitrates à 15°C

2.2.2.2 Identification du ou des donneurs d'électrons impliqué(s) dans la réduction des nitrates

Les réactions de dénitrification et de réduction des nitrates impliquent un échange d'électron entre les nitrates (accepteur d'électrons) et un donneur d'électrons. Si l'on considère en première approche que la réaction de réduction des nitrates en nitrites repose sur l'utilisation par la microflore de la matière organique présente dans l'eau d'alimentation, assimilée à de l'acétate, on obtient la réaction suivante :



La teneur en matière organique de l'eau d'alimentation étant de 0,8 mg/L de COT, on obtient un équivalent acétate de $3,33 \cdot 10^{-2}$ mmol/L. D'après l'équation, la réduction d'une mmole d'acétate engendre la réduction de 4 mmol de NO_3^- . L'épuisement des concentrations en acétate de l'eau d'alimentation conduit donc à la réduction de 0,133 mmol/L de NO_3^- , largement inférieure au taux d'abattement observé dans le cadre de l'essai. On en conclut que le mécanisme de réduction des nitrates par hétérotrophie ne permet d'expliquer les taux d'abattement observés.

Face à ce constat, il convient d'envisager l'implication d'un autre processus de réduction des nitrates qui passe par l'utilisation d'un donneur d'électrons inorganique (autotrophie), d'autant plus que des teneurs élevées en fer ont été détectées tout au long de l'essai en sortie de colonne (Figure 145). Même si le mécanisme de dénitrification hétérotrophe est le plus

largement étudié dans la littérature, certains travaux menés sur des aquifères, dans lesquels la quantité et la biodisponibilité du carbone étaient limitantes, ont montré que le processus de dénitrification pouvait être couplé à l'oxydation de minéraux sulfurés (Jørgensen *et al.*, 2009) ou associé à l'utilisation du fer divalent ou des composés tels que l' H_2S ou le CH_4 comme source d'électron (Postma *et al.*, 1991).

L'examen de la composition minéralogique du sédiment employé dans cet essai montre que la présence de minéraux sulfurés tel que la pyrite peut être exclue. Cette hypothèse est confirmée par le suivi de l'évolution des concentrations en sulfates en sortie de colonne, qui affichent une grande stabilité tout au long de l'essai (données non montrées), avec des valeurs coïncidant avec les concentrations initiales (eau d'alimentation).

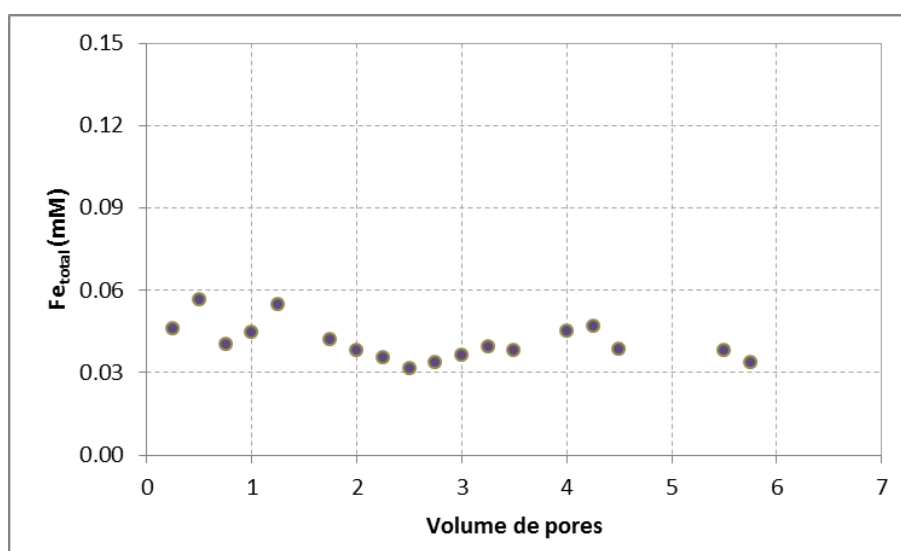


Figure 145 : Evolution des teneurs en fer total en sortie de colonne. Notons que l'eau d'alimentation est totalement dépourvue de fer en solution (mesures journalières)

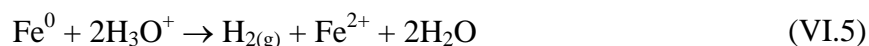
Par ailleurs, la dissolution de minéraux porteurs de fer présents dans l'assemblage minéralogique (illite/smectite, kaolinite) a été également écartée aux vues (i) de la gamme de concentration relativement élevée analysée en solution ainsi que (ii) les faibles niveaux de température (14°C) et de temps de réaction qui ne permettent pas de justifier ces concentrations.

Reste à envisager une dernière hypothèse, mise de côté jusqu'à présent, mais qui va s'avérer être la plus plausible pour commenter ces résultats. La réduction des nitrates proviendrait de l'utilisation, par les microorganismes en présence, du fer zéro valent, noté Fe^0 , ou de l'hydrogène (H_2) en tant que donneurs d'électrons.

Dans le premier cas de figure, la réaction de réduction complète des nitrates (jusqu'au stade N_2) se déroulerait comme suit (Till *et al.*, 1998) :



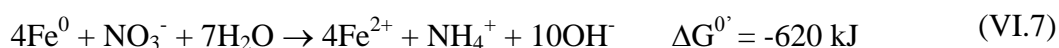
Dans le second cas de figure, le donneur d'électrons serait l'hydrogène, provenant de la réaction de corrosion (oxydation) du Fe^0 de l'acier constitutif des colonnes de percolation, définie par l'équation électrochimique globale suivante :



La réaction globale de dénitrification, utilisant l'hydrogène comme source d'électrons par un consortium de bactéries hydrogénotrophes, serait donc (Kurt *et al.*, 1987) :



Il est important de remarquer que la réduction purement chimique des nitrates par Fe^0 a fait l'objet de nombreux travaux, initiés dans les années 90 (Rahman et Agrawal, 1997), dans le but de proposer une méthode alternative aux traitements chimiques conventionnels (résine échangeuse d'ions et procédés membranaires). Il en ressort que la réduction des nitrates par le fer zéro valent est thermodynamiquement très favorable comme l'illustre la variation d'enthalpie libre associée à la réaction suivante (Till *et al.*, 1998) :



Les cinétiques de cette réaction sont très rapides et complètes pour des valeurs de pH relativement limitées, comprises entre 2 et 3, mais diminuent considérablement pour des pH supérieurs à 5 (Huang *et al.*, 1998 ; Choe *et al.*, 2004). De plus, les expériences de ces auteurs ont été menées en utilisant des quantités importantes de Fe^0 développant d'énormes surfaces spécifiques (tournure de fer, nanoparticule).

Ces observations nous conduisent donc à négliger, en première approche, l'influence des cinétiques chimiques dans le cadre de nos essais, *i.e.* pour des temps de réactions de 8h (correspondant aux temps de séjour dans les colonnes pour un débit d'injection de 2 mL/min).

En conclusion, il a été mis en évidence que le phénomène de dénitrification et/ou de réduction des nitrates observés au cours de cet essai fait intervenir un processus de type autotrophique de réduction des nitrates cohabitant éventuellement avec un processus organotrophe, compte

tenu de la présence de matière organique dans les eaux. Cette réduction autotrophe ferait donc intervenir un consortium bactérien doté de capacité d'hydrogénotrophie (l'hydrogène provenant de la corrosion du fer de l'acier constitutif des colonnes de percolation), constat quelque peu surprenant compte tenu du fait que ces types trophiques sont habituellement associés à des milieux évoluant en conditions réductrices profondes. Cependant cette capacité à utiliser l'hydrogène comme source d'énergie parmi les communautés dénitrifiantes semble assez répandue (Tiedje, 1988 extrait de Kielemoes *et al.*, 2000).

Il ressort de cet essai que l'eau du site de Lyon, contenant des nitrates, est partiellement dénitrifiée lorsqu'elle percole dans les colonnes de percolation du dispositif expérimental contenant la même matrice de Lyon. Ce phénomène n'a pas été observé sur le site réel de Lyon par nos suivis. Il s'agirait d'un biais généré par l'acier constitutif de nos colonnes de percolation. Aussi, il apparaît que cette dénitrification après une phase de cinétique rapide (1 volume poral) atteint un plateau (cinétique constante), montrant une limitation de la réaction par un des éléments réducteurs du nitrate (Fe^0 et/ou H_2).

2.2.2.3 Evolution des autres paramètres physico-chimiques

Le suivi du potentiel redox et de la conductivité (corrigée à 25°C) est reporté sur la figure 146 ci-dessous. L'évolution du potentiel redox montre tout d'abord une nette diminution dès le lancement de l'essai, qui passe d'environ 380 mV à 100mV/ENH en l'espace d'un volume de pores, puis diminue à nouveau jusqu'à environ -350 mV/ENH. Dans cette chute du potentiel, il est possible d'observer un plateau qui correspond au contrôle du redox par un couple précis, supposé correspondre dans notre cas au couple $\text{NO}_3^-/\text{NO}_2^-$.

Le suivi de la conductivité et du pH montre que ces paramètres tendent à se stabiliser rapidement après le démarrage de l'essai, à des valeurs très légèrement supérieures à celle de l'eau d'alimentation.

Le pH moyen en sortie de colonne est de 7,1. Si cette eau était sous contrôle du couple redox H^+/H_2 son potentiel d'équilibre serait de -400 mV/ENH comme établi par le calcul suivant :

$$E_{\text{eq}} = E^\circ_{(\text{H}^+/\text{H}_2)} + (2.3 \text{ RT/F}) \cdot \log(\text{H}^+) = 0 - 0,0571 \cdot \text{pH} = -0,405 \text{ mV/ENH}$$

Etant donné la proximité des valeurs on peut considérer qu'au-delà du premier volume de pore, les très faibles valeurs de potentiel redox attestent d'un contrôle exercé par le couple H^+/H_2 , confirmant l'établissement du processus de corrosion dès le lancement de l'essai.

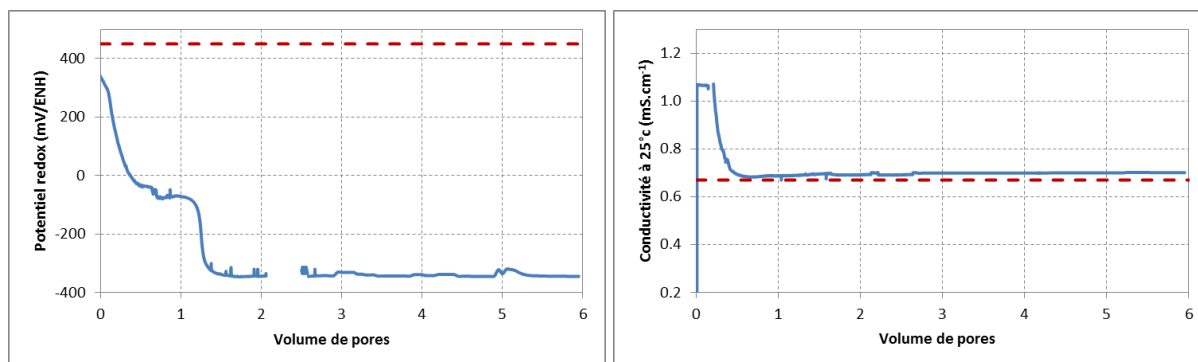


Figure 146 : Evolution du potentiel d'oxydo-réduction de l'effluent en sortie de colonne ; la valeur de la solution d'alimentation est symbolisée par un trait pointillé horizontal

2.2.3 Essai de percolation à 25°C

2.2.3.1 Quantification de l'abattement des nitrates

L'abattement des nitrates consécutif au transfert dans la colonne est beaucoup plus marqué en comparaison avec l'essai précédent. La production de NO_2 est également plus importante (Figure 147).

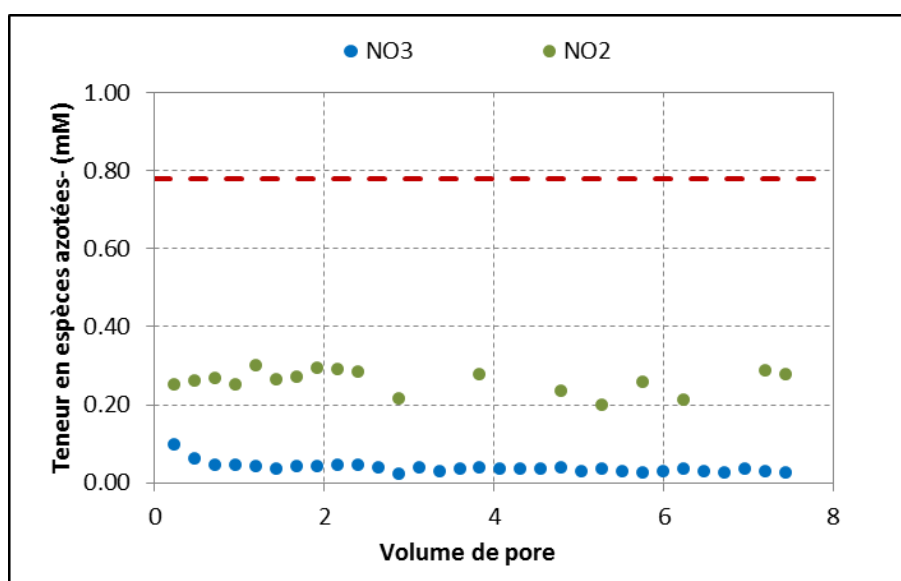


Figure 147 : Evolution des teneurs en NO_3^- et NO_2^- en fonction du volume d'eau porale. Les teneurs initiales en NO_3^- sont indiquées par un trait pointillé horizontal

La figure 148 illustre la comparaison des cinétiques de réactions estimées au cours des deux essais. Le tableau 30 synthétise quant à lui, les cinétiques moyennes calculées sur l'ensemble de la durée des essais.

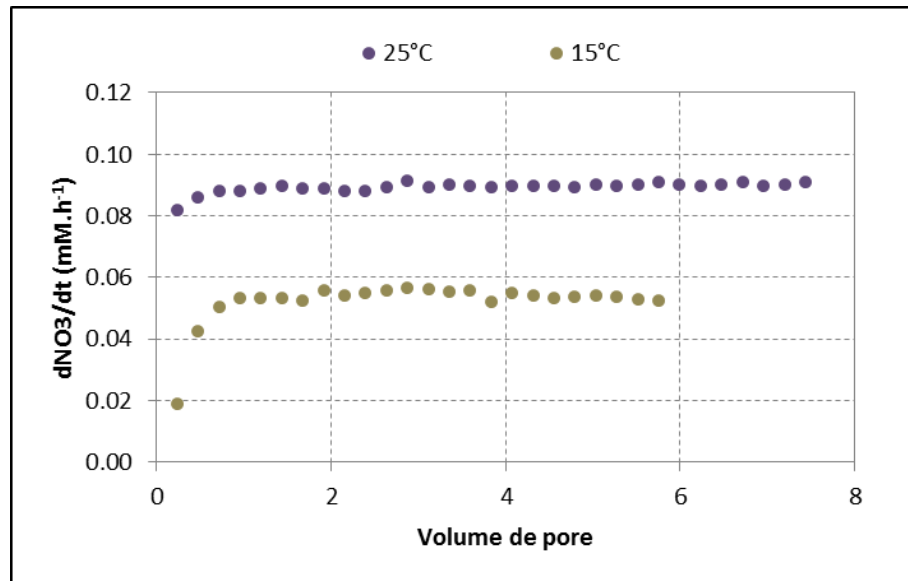


Figure 148 : Comparaison des cinétiques de réduction des nitrates entre les essais réalisés à 15 et 25°C

Ces résultats font apparaître qu'un accroissement de la température tend à amplifier le processus de dénitrification naturellement initié au sein de la colonne. La valeur de Q_{10} , obtenue à partir des cinétiques moyennes calculées pour les deux essais, est voisine de 1,7, et proche de celle reporté dans la littérature pour les processus de dénitrification (Juncher Jørgensen *et al.*, 2009).

Tableau 30 : Comparaison des cinétiques de réduction des nitrates inter-essais

	15°C	25°C	Q_{10}
Moyenne	0.0518	0.0891	1.72
Ecart Moyen	0.0047	0.0189	

2.2.3.2 Suivi des autres paramètres

Le suivi des mesures en continue de pH montre que celui-ci tend à correspondre à la valeur de pH de l'eau d'alimentation (données non montrée). A noter toutefois que les valeurs de pH ne semblent pas être affectées par le processus de dénitrification qui fait intervenir explicitement des protons (consommation de protons lors de la conversion en NO_2^-), comme décrit dans l'équation bilan suivante :



L'augmentation des teneurs en silice dissoute au cours du transfert dans la colonne (Figure 149) témoigne d'un phénomène de dissolution au niveau de certains minéraux présents dans la matrice sédimentaire. La solubilité de la plupart des minéraux silicatés étant prograde, une augmentation de température a pour conséquence une augmentation des teneurs en silice dissoute.

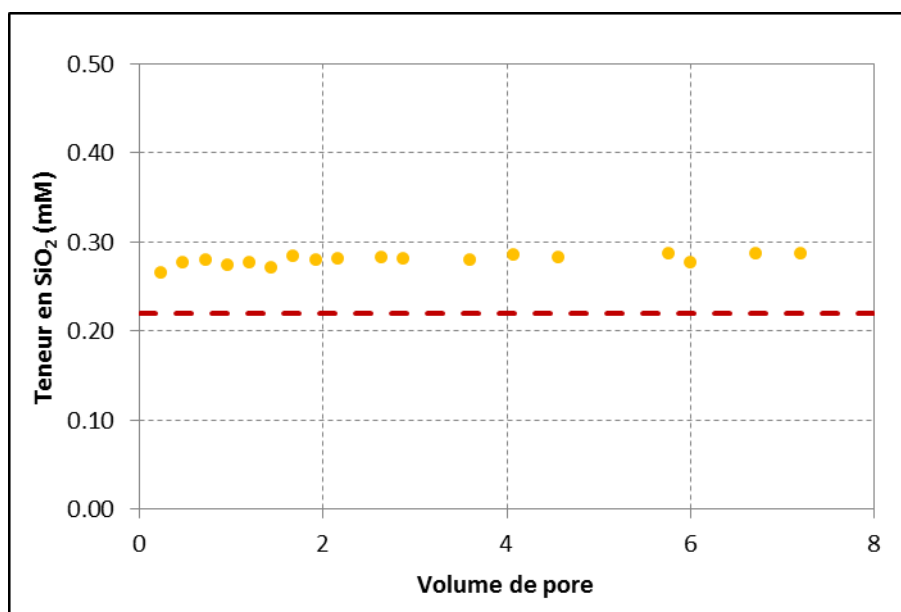


Figure 149 : Evolution des teneurs en silice dissoute lors de l'essai en colonne à 25°C

2.2.4 Essai de percolation à 35°C

Un essai supplémentaire a été effectué à une température de 35°C, mais les interprétations ne sont pas suffisamment abouties pour figurer dans ce mémoire. Néanmoins, les résultats concernant les cinétiques de réduction des nitrates ont pu être obtenus et sont reportés dans la figure 150, en comparaison avec ceux récoltés au cours des essais précédents.

La lecture du graphique fait apparaître que les taux d'abattement des nitrates sont nettement inférieurs à ceux calculés pour l'essai à 25°C, et sont relativement proches de ceux correspondant à l'essai à 15°C. Ces résultats traduisent une baisse significative de l'activité métabolique et permettent de confirmer l'implication active des processus biologiques dans les phénomènes de réduction des nitrates.

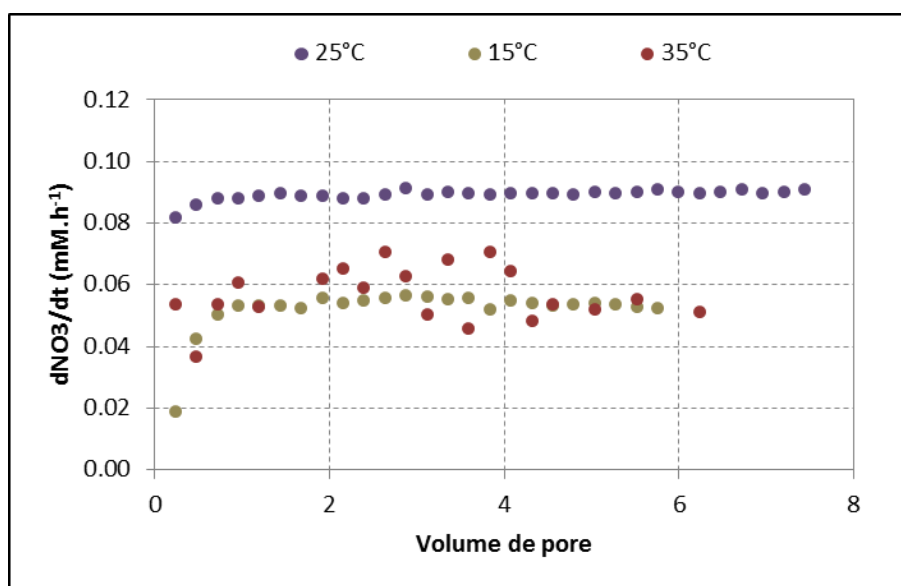


Figure 150 : Comparaison des cinétiques de réduction des nitrates inter-essais (15, 25 et 35°C)

2.3 Conclusions

L'enjeu du programme d'expérimentation mis en œuvre à l'échelle du pilote a consisté à recueillir des données nécessaires à la compréhension des processus biogéochimiques induits par l'application d'une perturbation thermique dans un modèle réduit d'aquifère. Le principal atout de cette démarche est de s'affranchir des contraintes inhérentes à l'approche de terrain *via* la maîtrise des conditions expérimentales.

Les travaux présentés dans ce chapitre ont porté sur :

- la mise au point d'une méthodologie permettant de (i) de s'assurer de la reproductibilité de essais *via* le développement d'un protocole de garnissage des colonnes et (ii) de caractériser finement les propriétés hydrodynamique de l'écoulement (et leurs évolutions) *via* des essais de traçage.
- l'analyse de l'évolution physico-chimique du fluide (mesures ponctuelles et en continue) afin d'en déduire les processus réactionnels mis en jeu au cours du transfert dans la colonne.

Le bilan global de ces expérimentations permet tout d'abord de conclure quant à la validation du dispositif expérimental et à la bonne maîtrise de la conduite des essais de percolation.

En ce qui concerne les essais menés au niveau du site de Balandran, les résultats obtenus montrent, que pour des vitesses de circulations supérieures à 1m/jrs, les impacts géochimiques

demeurent négligeables pour des températures de réinjection inférieures à 28°C. L'essai effectué à 40°C révèle la survenue d'une précipitation de carbonates dans les premiers volumes de pores, qui s'atténue rapidement et ne perdure pas au-delà du 3^e volume de pore. Ce phénomène est probablement imputable à la présence d'inhibiteur de cristallisation et/ou de croissance cristalline, mobilisé à partir de la matrice sédimentaire (ligands organiques, phosphates). Pour des temps de séjour plus conséquents (7 jours, 30 jours), on constate que la précipitation de carbonates est d'autant plus importante que le temps de séjour et les niveaux de température sont élevés. En ce qui concerne le comportement des phases silicatées, les analyses font apparaître que le système est particulièrement sensible à l'augmentation de la température et atteint rapidement l'équilibre, du fait de la présence de silices amorphes et/ou microcristallines, particulièrement réactives. La présence d'aluminium à de faibles concentrations, atteste également de la dissolution de phases minérales plus complexes, type feldspath par exemple.

Les simulations réalisées à partir de l'eau et du sédiment récoltés au niveau de la Mairie du 8^e à Lyon, ont permis d'intégrer la composante biologique au niveau des expériences. Dès le lancement des essais, la solution en sortie de colonne a rapidement évolué vers des conditions réductrices profondes, accompagnées d'un processus actif de réduction des nitrates et de la présence de fer dans les échantillons collectés. L'intégration des différents paramètres a permis de mettre en évidence la présence d'un mécanisme autotrophe de réduction des nitrates couplé à la corrosion de l'acier inoxydable. La réalisation d'essais à différentes températures a permis d'estimer l'influence de la température sur cette activité métabolique spécifique, qui montre une tendance d'évolution similaire aux mesures d'activités décrites dans le chapitre IV.

CONCLUSIONS GENERALES ET PERSPECTIVES

1. Bilan des travaux

Pour la climatisation de bâtiments ou d'installations industrielles ou agricoles, les nappes d'eaux superficielles représentent une source froide très convoitée. De plus, la facilité d'accès aux nappes phréatiques a permis le développement rapide et à grande échelle de leur exploitation à des fins énergétiques. Ainsi, dans certaines grandes agglomérations implantées sur de larges vallées alluviales, de grandes puissances thermiques sont actuellement dissipées dans les nappes sans aucun dispositif de surveillance adapté.

Même si l'on peut globalement prévoir, sur le plan théorique, l'influence d'une élévation de température sur les différents paramètres hydrauliques, chimiques et biologiques, la transposition des modèles à des cas réels demeure, en général, délicate en raison de la multiplicité et la complexité des phénomènes mis en jeu, qui ouvrent un large éventail de cas de figures possibles. Les conséquences peuvent être, en effet, très variables suivant le profil initial des eaux, la nature du contexte hydrogéologique et les modes d'exploitation.

Dans ce contexte, et pour accompagner durablement le redéploiement de la filière géothermique très basse enthalpie, la présente étude avait pour but d'évaluer l'impact de variations locales de température sur la qualité physico-chimique et microbiologique des eaux souterraines sur la base :

(i) de suivis *in situ* au niveau d'installations réelles exploitant les nappes d'eaux superficielles : trois sites d'études ont ainsi été sélectionnés mettant en œuvre deux types de technologies différentes :

- Les sondes géothermiques verticales au niveau de la plateforme expérimentale pour les échangeurs géothermiques (site du BRGM-Orléans)
- Les doublets de forages géothermiques : installation isolée (site agricole, Balandran, Gard) et installation en zone urbanisée (agglomération lyonnaise).

L'approche expérimentale a consisté en l'implantation d'un réseau de surveillance constitué de piézomètres de suivi qui ont été spécifiquement instrumentés en fonction des caractéristiques propres à chaque site et sur lesquels des campagnes de mesure et d'échantillonnage ont été menées (avec une fréquence d'analyse ajustée en fonction du régime d'exploitation) sur des périodes approchant ou largement dépassant une année..

(ii) d'expérimentations sur un pilote (BIOTHERMEX) permettant de reproduire, en conditions parfaitement maîtrisées et réalistes de subsurface, les variations de températures et de qualité du fluide induits par les cycles saisonniers de fonctionnement d'une installation géothermique. Chaque expérimentation a duré environ une dizaine de jours.

Dans la gamme de température relevée sur site (14 à 28°C), les principaux résultats obtenus à ce jour se déclinent en trois domaines ou axes principaux :

- **Domaine hydrothermique :**

Cette étude a tout d'abord permis d'évaluer l'aire d'influence des rejets thermiques et de mettre en évidence leurs effets au niveau du régime thermique des nappes d'eau souterraines.

Dans le cas de Balandran, le mode de fonctionnement par intermittence de l'installation, couplé à une forte vitesse de propagation de la nappe, induit une rapide dissipation du panache thermique, en l'espace de quelques heures, par la formation aquifère. Par ailleurs, la perturbation thermique voit son amplitude amortie au cours de son parcours et qui devient imperceptible à une centaine de mètres en aval du puits chaud.

Dans le cas de l'installation de la Mairie du 8^e à Lyon, les chroniques de température acquises durant un cycle hydrogéologique montrent que l'installation géothermique altère jusqu'à plus d'une dizaine de degré centigrade la sténothermie de la nappe à l'aplomb du site durant la période estivale, qui correspond au cycle de fonctionnement de l'installation géothermique. Au-delà de cette période, les températures décroissent progressivement pour atteindre, aux alentours du mois de mai, les valeurs de température relevées l'année précédente. Cette tendance n'est toutefois pas remarquée pour l'un des piézomètres impactés (P2), qui pourrait s'expliquer par un effet cumulatif des rejets thermiques à l'échelle interannuel, conduisant à l'augmentation progressive de la température à l'aplomb de ce piézomètre. La zone d'influence des rejets thermiques semble être également relativement limitée, *i.e* circonscrite à environ 50 m coté amont et à 150 m en aval du puits de réinjection.

Dans le cas d'une sonde géothermique verticale, les impacts thermiques sont nettement moins importants en raison des faibles puissances mises en jeu en comparaison avec les dispositifs précédents. Une expérience d'injection de chaleur de longue durée a permis de mettre en exergue une augmentation significative de la température à 3 mètres de la sonde, avec des

niveaux de température inégalement répartis selon la profondeur, du fait de la présence d'un écoulement souterrain qui atténue de façon sensible les impacts.

- **Domaine hydrogéochimique :**

Pour apprécier les effets des rejets thermiques sur l'évolution géochimique des eaux, des mesures ponctuelles, dont la fréquence a été ajustée en fonction du régime des exploitations ont été mises en œuvre. Pour le site de la Mairie du 8^e, un dispositif de mesure en continu (potentiel redox, conductivité, oxygène dissous, température) a été déployé en complément, sur l'ensemble du réseau de piézomètre. Les résultats obtenus ne montrent aucun signe d'altération significatif, tant en ce qui concerne l'évolution des paramètres non conservatifs, que des espèces majeures et traces. Les simulations géochimiques effectuées à partir de la composition des eaux et des sédiments montrent que les risques de précipitations de minéraux, au cours de la réinjection du fluide, semblent réduits.

- **Domaine hydrobiologique :**

La réponse du compartiment bactérien à ces changements de conditions du milieu a été effectuée par une triple approche : (i) dénombrement de la biomasse (microflore totale et indicateurs de contamination fécale), (ii) suivi de l'activité métabolique *via* le développement de méthode de mesure d'activité globale (activité INT-réductase, activité hydrolytique, suivi de la minéralisation de différentes sources de carbone), et (iii) suivi de la structure et de la diversité des espèces résidentes.

Les résultats les plus marquants concernent la stimulation de l'activité métabolique des bactéries, dans la gamme de température physiologique, quelle que soit l'approche considérée. L'activité métabolique s'accroît ainsi nettement en réponse à une hausse de température, d'un facteur voisin de 2 par tranche de 10°C, jusqu'à atteindre un optimum, situé aux alentours de 27-28°C pour les sites de Balandran et de la Mairie du 8^e à Lyon. Ainsi, bien que les communautés évoluent dans un environnement relativement tamponnée vis-à-vis des fluctuations de température (hors incidence d'une installation géothermique), les résultats montrent que celles-ci sont capables de tolérer une gamme beaucoup plus large de variations de température.

En ce qui concerne le suivi de la diversité bactérienne, les résultats obtenus révèlent une certaine dynamique dans l'évolution de la structure des communautés :

- Dans le cas de Balandran, l'examen de la distribution spatio-temporelle des profils de diversité révèle, d'une manière générale, une faible variabilité au niveau des différents points d'accès à la nappe au cours du temps. Cependant, quelques variations modérées ont été enregistrées à certaines périodes de l'année. Par ailleurs, l'absence de perturbations thermiques significatives et durables dans le milieu ne permet pas de conclure quant à l'incidence éventuelle des rejets thermiques sur la structure des communautés.

- Dans le cas de l'installation située dans l'agglomération lyonnaise, le suivi de la diversité bactérienne a fait ressortir une structuration spatio-temporelle nettement plus marquée, qui rend particulièrement délicat l'analyse et l'interprétation des résultats. Des analyses de co-inertie ont été mises en œuvre afin de dégager une éventuelle incidence de la variable température. Les résultats obtenus suggèrent que la température semble affecter, du moins ponctuellement, la structure des communautés bactériennes en présence au niveau de certains points de mesure, particulièrement impactés par les rejets thermiques. Cependant, sur la base des observations effectuées, il semblerait que les variations saisonnières au sens large (influence compartiment de surface, composante urbaine) soient nettement plus structurantes au niveau de la composition des communautés que la variable température.

La synthèse du suivi de la structure des communautés révèle que la structure du compartiment bactérien ne constitue pas un ensemble figé et est caractérisé par un état d'équilibre dynamique. Ce constat montre clairement la limite d'un échantillonnage ponctuel comme référentiel absolu. Seule une approche basée sur des prélèvements à fréquence régulière semble adaptée pour le suivi de ce type de milieu.

Le programme d'expérimentation à l'échelle du pilote BIOTHERMEX a, tout d'abord, permis de valider la pertinence de l'approche mise en œuvre et la maîtrise des conditions de l'essai. Les résultats obtenus montrent que sur le plan géochimique (ex : Balandran), les principaux désordres sont fonction du temps de séjour et de la température de réinjection. Pour des vitesses de circulation de la nappe nulle (expérience en batch), des précipitations sont observées dès l'application d'une température de 30°C. Pour une vitesse de circulation voisine de 1 m/jour, les principales interactions eaux roches préjudiciables se manifestent au voisinage de 40°C, et seulement durant les premières phases de l'essai. Les simulations

appliquées dans le contexte lyonnais ont tout d'abord montré la capacité remarquable de la microflore endogène à s'adapter aux conditions du milieu (disponibilité en accepteur d'électrons), *via* l'initiation d'un processus actif de corrosion couplé à la réduction des nitrates. Même si ces observations s'écartent des conditions rencontrées sur site, les résultats concernant l'influence de la température montre une stimulation de l'activité bactérienne, du même ordre de grandeur que celle observée lors des investigations sur site (i.e avec un Q_{10} voisin de 2).

Les réchauffements locaux observés dans les nappes à l'aplomb des installations, en condition hydroclimatique qualifiée de normale, n'ont pas montré de signe de dégradation de la qualité des eaux, au regard de l'évolution de la composition physico-chimique et des aspects relatifs au compartiment bactérien. Ces conclusions doivent être interprétées en prenant en compte le fait que :

- la charge organique dans les eaux était très faible, limitant ainsi considérablement le métabolisme bactérien
- la recharge en oxygène était dans la plupart des cas considérée comme constante, du fait de la typologie des aquifères (nappes libres), permettant ainsi d'éviter une désoxygénation des eaux.

En conclusion, les travaux menés au cours de cette thèse ont permis de répondre aux principales questions initialement posées sur l'impact de variations locales de température sur la qualité physico-chimique et microbiologique des eaux souterraines. Il a été possible :

- d'approcher l'air d'influence de rejets thermiques et d'évaluer leur impact, plus ou moins durable, sur la sténothermie des nappes d'eau souterraines.
- de déterminer les incidences des fluctuations de température au niveau des équilibres géochimiques et biologiques et d'en déduire les conséquences possibles à l'échelle de l'installation, pour la pérennité des équipements, ainsi qu'au niveau de la qualité de la ressource en eau.
- de développer et valider une approche métrologique riche et complète, susceptible d'être transposée à n'importe quel autre site géothermique et permettant de suivre les indicateurs physico-chimiques et/ou microbiologiques, dont la présence ou l'état est susceptible de caractériser l'ampleur des perturbations.

2. Perspectives

Les perspectives émanant directement de ce travail sont nombreuses. Il s'agirait par exemple :

- Poursuivre les investigations à l'échelle de plusieurs cycles hydrogéologiques : les retours d'expériences provenant d'autres applications de la géothermie, telle que par exemple la géothermie basse enthalpie du bassin parisien (2000 m de profondeur), ont montré que les perturbations notables se dévoilent après plusieurs années d'exploitation. Ainsi, les durées des suivis que nous avons pratiqués dans le cadre de ces travaux, même si elles paraissent importantes, ne sont certainement pas suffisantes pour repérer tous les dysfonctionnements ou anomalies futurs.

- D'étendre le dispositif de surveillance à des situations plus problématiques : si les installations isolées ou avec de faibles débits d'exploitation (type PAC résidentielle) ne constituent pas de source de risque notable, les zones à forte densité d'installations et/ou d'installations de fortes puissances, sollicitant de fortes portions d'aquifère, doivent faire l'objet d'une attention particulière. Par ailleurs, il serait intéressant de couvrir des cas de figures où la nappe présente de fortes charges en matière organique (par exemple nappe polluée par les hydrocarbures), associées ou non à des conditions anoxiques (nappe captive), pour lesquelles les désordres seront plus propices à se manifester, à plus ou moins long terme.

- Développer des moyens d'études complémentaires au niveau microbiologique comme par exemple identifier les souches bactériennes en présence (clonages, séquençages) et approcher ainsi la véritable richesse taxonomique de l'échantillon, analyse par FISH (*Fluorescence In Situ Hybridization*) afin de quantifier la proportion relative de différents taxons ou groupes bactériens ou encore d'intégrer d'autres composantes de l'écosystème souvent négligées tels que la microfaune (invertébrés principalement) dont la sensibilité et la tolérance aux variations thermiques semblent vraisemblablement beaucoup plus limitées. L'approche peut être également étendue à l'étude de gène de fonction dans le but d'appréhender l'influence de la température au niveau de la diversité fonctionnelle.

- Poursuivre les simulations à l'échelle du pilote BIOTHERMEX, qui ont permis d'obtenir des résultats très encourageants dans le cadre de cette étude. Ce dispositif constitue en effet un outil pertinent et privilégié pour juger de la réactivité du système en condition dynamique. En l'espace de quelques jours à quelques semaines, les simulations de percolation peuvent fournir des résultats jusque-là insoupçonnés. De plus, cette approche permet de réaliser des économies substantielles puisque l'on évite la lourde procédure inhérente au suivi de terrain (foration, instrumentation, déplacement sur site, ...). Par ailleurs, cet outil permet de pousser l'expérimentation à ses limites, bien au-delà des conditions rencontrées sur le terrain, dans le but de définir des seuils critiques ou tolérables (température, débit, formulation de l'eau d'alimentation,...).

Outre les perspectives précédemment décrites, ce travail de thèse ouvre de nouveaux débouchés qui consistent à tirer profit des panaches thermiques générés dans le milieu souterrain afin d'optimiser les techniques de dépollution *in-situ* (Hoes *et al.*, 2012 ; Garnier *et al.*, 2011), notamment en ce qui concerne l'élimination des composés organiques volatils (COV), tels que les COV halogénés ou encore les BTEX (Benzène, Toluène, Ethyle-Benzène, Xylène)..

Ces techniques innovantes de couplage entre géothermie et procédés de traitement classiques (pompage/traitement, venting/sparging, biodégradation dynamisée) reposent d'une part sur l'effet stimulateur de la température sur l'activité métabolique des microorganismes et (ii) sur les propriétés intrinsèques de ces polluants : une augmentation de la température entraîne en effet une hausse de leurs mobilités, volatilités et de leurs solubilités ainsi qu'une diminution de leurs viscosités. Le positionnement de cette technique se trouve à mi-chemin entre les procédés de désorption thermique, les techniques de soutien thermique haute température et les méthodes extractives « froides » comme le venting/sparging et la biodégradation dynamisée.

REFERENCES

BIBLIOGRAPHIQUES

-A-

ADEME (2005) - Représentativité des échantillons d'eau prélevés en forages de contrôle : Synthèse et conclusions.

Adam G. et Duncan H. (2001) - Development of a sensitive and rapid method for the measurement of total microbial activity using fluorescein diacetate (FDA) in a range of soils. *Soil Biology and Biochemistry* 33: 943-951.

Aizenberg-Gershtein Y., Vaizel-Ohayon D. et Halpern M. (2012) Structure of bacterial communities in diverse freshwater habitats. *Canadian Journal of Microbiology* 58: 326-335.

Allen A., Milenic D. et Sikora P. (2003) - Shallow gravel aquifers and the urban 'heat island effect': a source of low enthalpy geothermal energy. *Geothermics* 32: 569-578

Amann R.I., Ludwig W. et Schleifer K.H. (1995) - Phylogenetic identification and in situ detection of individual microbial cells without cultivation. *Microbiol. Rev.* 59: 143-169.

-B-

Battin T. J. (1997) - Assessment of fluorescein diacetate hydrolysis as measure of total esterase activity in natural stream sediment biofilms. *Sci. Total Environ.* 198: 51-60.

Bent S. J. and L. J. Forney (2008) - The tragedy of the uncommon: understanding limitations in the analysis of microbial diversity. *ISME J* 2(7): 689-695.

Blanc P., Gaucher E.C., Legendre O., Tournassat C., Lerouge C. et Jacquot E. (2006) - Quantitative mineralogy in clayey rocks: introducing constraints from XRD modelling into a modal calculation code. 43rd CMS annual meeting, June 2006, France, 42p.

Blanc P., Legendre O. et Gaucher E.C. (2007) - Estimate of clay minerals amounts from XRD pattern modeling : the Arquant model. *Phys. Chem. Earth* 32(1-7), 135-144.

Benson B.B. et Krause D.K. (1984) - The concentration and isotopic fractionation of oxygen dissolved in fresh water and seawater in equilibrium with the atmosphere. *Limnol. Oceanogr.*, 29, 620-632.

Briellmann H., Griebler C., Schmid S., Michel R. et Lueders T. (2009) - Effects of thermal energy discharge on shallow groundwater ecosystems. *FEMS Microbiology Ecology* 68: 273-286.

Broberg A. (1985) - A modified method for studies of electron transport system activity in freshwater sediments. *Hydrobiologia* 120: 181-187.

Butler B.J., Barbaro S.E., Crocker F.H. et Mayfield C.I. (1997) - Characterization of microbial populations of the borden aquifer. *Geomicrobiology Journal* 14: 253-268.

-C-

Carslaw H.S. et Jaeger J. C. (1947) - *Conduction of Heat in Solids*. Oxford.

Chapelle F.H. (1993) - *Ground-water microbiology and geochemistry*. John Wiley and Sons, New York, NY.

Chartier R., Desplan A. et Bezelgues-Courtade S. (2009) – Surveillance des installations géothermiques sur aquifères dans l'agglomération lyonnaise (69) – Rapport final – BRGM RP-57507-FR, 56p. 7 fig, 3 ann.

Choi K.H. et Dobbs FC (1999) - Comparison of two kinds of Biolog microplates (GN and ECO) in their ability to distinguish among aquatic microbial communities. *Journal of Microbiological Methods* 36: 203-213.

Cullimore R. (2000) - *Microbiology of Well Biofouling* . Lewis Publishers.

-D-

David A. (2003) - Analyse critique de 5 campagnes de mesures thermiques réalisées entre 1999 et 2002 sur la nappe de l'agglomération Lyonnaise. BRGM/RP-52665-FR

Davis E.L. (1997) - How heat can enhance in-situ soil and aquifer remediation [electronic resource] important chemical properties and guidance on choosing the appropriate technique / Eva L. Davis. United States Environmental Protection Agency.

Davison W. et Seed G. (1983) - The kinetics of the oxidation of ferrous iron in synthetic and natural waters. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 47: 67-79.

Degallier R. (1987) - Décolmatage des puits et forages. Manuel pratique. *Hydrogéologie*, n 1: 3-25.

Dehnert J., Kuhn K., Freyer K. et Treutler H.C. (2000) - Überwachung des hydraulischen Kriteriums bei der Grundwasserprobenahme. *Wasser und Abfall* 1-2, 2000, 24-30.

Delbès C., Leclerc M., Zumstein E., Godon J.J. et Moletta R. (2001) - A molecular method to study population and activity dynamics in anaerobic digestors. *Water Sci Technol.* 43, p. 51-57.

Dufour P. et Colon M. (1992) - The tetrazolium reduction method for assessing the viability of individual bacterial cells in aquatic environments: improvements, performance and applications. *Hydrobiologia* 232:211-218

Durst P., Garnier F., Parmentier M., Bézelgues-Courtade S., Ignatiadis I., Avec la collaboration de **Orofino S. et Levillon F.** (2012) - ImPAC Lyon : Évaluation de l'impact environnemental dû aux modifications thermiques induites par les PAC sur aquifères superficiels - Année 2. Rapport final. BRGM/RP-60786-FR, 152 p., 50 fig., 17 tab., 8 ann.

-E/F-

EPA (2000) - Groundwater sampling guidelines, EPA publication 669, EPA Victoria.

Ferguson G. et Woodbury A. D. (2004). "Subsurface heat flow in an urban environment." *J. Geophys. Res.* **109**.

Fesch C., Lehmann P., Haderlein S.B., Hinz C., Schwarzenbach R.P. et Flühler H. (1998) - Effect of water content on solute transport in a porous medium containing reactive micro-aggregates. *Journal of Contaminant Hydrology* 33: 211-230.

Fortin D. (2004) - What Biogenic Minerals Tell Us. *Science* 303: 1618-1619.

Foulquier A., Malard F., Barraud S. et Gilbert J. (2009) - Thermal influence of urban groundwater recharge from stormwater infiltration basins. *Hydrol. Process* **23**: 1701-1713

-G-

Garnier F., Lesueur H., Motelica-Heino M. et Ignatiadis I. (2011) - Aquifer biotermoremediation using heat pumps: sound theoretical basis and results on thermal, geochemical and biological impacts on aquifers. Six pages article (ID061) in the proceedings of the 5th European remediation Conference in Chania (Crete) 1-4 July 2011.

Gigout M. et Desprez N. (1971) - Notice explicative de la carte géologique 1/50 000 XXII-20 « La Ferté-Saint-Aubin ». *BRGM* 12 pp.

Goldscheider N., Hunkeler D. et Rossi P. (2006) - Review: Microbial biocenosis in pristine aquifers and an assessment of investigation methods. *Hydrogeology Journal* 14, 926-941.

Griebler C. et Lueders T. (2009) - Microbial diversity in groundwater ecosystems. *Freshwater Biology* 54: 649-677.

Griffioen J. et Appelo C.A.J. (1993) - Nature and extent of carbonate precipitation during aquifer thermal energy storage. *Applied geochemistry* 8: 161-176.

-H-

Hatzinger P.B., Palmer P., Smith R.L., Peñarrieta C.T. et Yoshinari T. (2003) - Applicability of tetrazolium salts for the measurement of respiratory activity and viability of groundwater bacteria. *Journal of Microbiological Methods* 52: 47-58.

Hijnen W.A.M. et Van der Koou D. (1992) - The effect of low concentrations of assimilable organic carbon (AOC) in water on biological clogging of sand beds. *Water Research* 26: 963-972.

Hoes, Patyn et Lookman (2012) - The combination of aquifer thermal energy storage (ATES) and groundwater remediation, 70p.

Horizon (2000) - Synthèse hydrogéologique et thermique des forages pompes à chaleur, Lyon – Villeurbanne (69). Rapport d'étude DH160, Horizons, Villefontaine

Horizon (2001) - Mesures thermiques 2001 sur la nappe de l'agglomération Lyonnaise

Horizon (2002) - Mesures thermiques 2001-2002 sur la nappe de l'agglomération Lyonnaise

Hornberger G.M., Mills A.L. et Herman J.S. (1992) - Bacterial transport in porous media: Evaluation of a model using laboratory observations. *Water Resour. Res.* 28: 915-923.

Howard L. (1833) - Climate of London, third ed. Harvey & Darton, London.

Huang S., Taniguchi M., Yamano M. et Wang C.H. (2008) - Detecting urbanization effects on surface and subsurface thermal environment – a case study of Osaka. *Sci. Total Environ.*

Hutzler N.J., Crittenden J.C., Gierke J.S. et Johnson A.S. (1986) - Transport of Organic Compounds with Saturated Groundwater Flow: Experimental Results. *Water Resour. Res.* 22: 285-295.

-I/J-

Ingersoll L. R. et Plass H.J. (1948) - Theory of the ground pipe heat source for the heat pump. *Heating, Piping and Air Conditioning*, pages 119-122.

Ingersoll L.R., Zobel O.J. et Ingersoll A. C. (1954) - Heat Conduction with Engineering, Geological and other Applications, chapitre 13, pages 248-256. Mc Graw-Hill.

Jenne E.A., Andersson O. et Willemsen A. (1992) - Well, hydrology and geochemistry problems encountered in ATEs systems and their solutions. In Proceedings of the 27th Intersociety Energy Conversion Engineering Conference.

John D.E. et Rose J.B. (2005) - Review of factors affecting microbial survival in groundwater. *Environmental Science and Technology* 39: 7345–7356.

Johnstone B. H. et Jones R. D. (1988) - Physiological effects of long-term energy-source deprivation on the survival of a marine chemolithotrophic ammonium oxidizing bacterium. *Mar. Ecol. Prog. Ser.* 49:295-303.

Jorgensen P.E., Eriksen T. et Jensen B.K. (1992) - Estimation of viable biomass in wastewater and activated sludge by determination of ATP, oxygen utilization rate and FDA hydrolysis. *Water Research* 26: 1495-1501.

-K-

Kashefi K. et Lovley D.R. (2003) - Extending the upper temperature limit for life. *Science*, 301(5635): 934.

Katterer T., Reichstein M., Andren O. et Lomander, A. (1998) - Temperature dependence of organic matter decomposition: a critical review using literature data analyzed with different models. *Biology and Fertility of Soils* 27: 258-262.

Kayane I., Taniguchi M. et Sanjo K. (1985) - Alteration of the groundwater thermal regime caused by advection. IAHS Press, Wallingford, Royaume-Uni.

-L-

Lee J.Y. (2006) - Characteristics of ground and groundwater temperatures in a metropolitan city, Korea : considerations for geothermal heat pumps. *Geosciences Journal*, 10 (2), 165-175.

Lepicier V. (2009) - Impacts thermiques des pompes à chaleur utilisées en climatisation sur les eaux souterraines de la ville de Lyon, Rapport de stage, Ecole des Hautes Etudes en Santé Publique.

Lepicier V., Garnier F., Chartier R. et Ignatiadis I. (2011) - Impacts thermiques des pompes à chaleur utilisées en climatisation sur les eaux souterraines de la ville de Lyon, BRGM/RP-60158-FR, 112 p. XX fig., 13 ill.

Lindberg R.D. et Runnels D.D. (1984) - Ground Water Redox Reactions: An Analysis of Equilibrium State Applied to Eh Measurements and Geochemical Modeling. *Science* 225: 925-927.

Loreau M., Naem S., Inchausti P., Bengtsson J., Grime J.-P., Hector A., Hooper D. U., Huston M. A., Raffaelli D., Schmid B., Tilman D. et Wardle D. A. (2001) - Biodiversity and ecosystem functioning : current knowledge and future challenges, *Science*, no 294, p. 804-808.

Lupe E. et Renaud F. (2006) – Surveillance de la qualité microbiologique de la nappe phréatique de Lyon en fonction de la température : relations avec les caractères physicochimiques (DBO5, DCO, pH, teneurs en nitrates, conductivité). Rapport intermédiaire du bureau d'étude Atlas.

-M-

- Macler B. A. et Merkle J. C.** (2008) - Current knowledge on groundwater microbial pathogens and their control. *Hydrogeol. J.* 8, 29-40.
- Martell A.E. Smith R.M. Motekaitis R.J.** (1977) - Critically selected stability constants of metal complexes, Version 4; US Department of Commerce, NIST, Gaithersburg, Maryland (MD).
- Mays D.C. et Hunt J.R.** (2004) - Hydrodynamic Aspects of Particle Clogging in Porous Media. *Environmental Science & Technology* 39: 577-584.
- Mawdsley J.L., Bardgett R.D., Meery R.J., Pain B.F., Theodourou M.K.** (1995) - Pathogens in Livestock Waste, their potential for Movement Through Soil and Environment Pollution. *Applied Soil Ecology*, 2 : 1-15.
- Mersi W. et Schinner F.** (1991) - An improved and accurate method for determining the dehydrogenase activity of soils with iodinitrotetrazolium chloride. *Biology and Fertility of Soils* 11: 216-220.
- Michard G** (2002) *Chimie des eaux naturelles principes de géochimie des eaux*. Publisud 461.
- Michelland R.J., Dejean S., Combes S., Lamothe L. et Cauquil L.** (2009) - Statfingerprints: a friendly graphical interface program for microbial fingerprint profiles processing and analysis. *Molecular Ecology Resources* Simpson, E. H. (1949). Measurement of diversity. *Nature* 163(4148): 688.
- Mouchet P.** (1992) - From conventional to biological removal of iron and manganese in France. *J Am Water Works Assoc* 1992;84(4):158–66.
- Mucci A.** (1983) - The solubility of calcite and aragonite in seawater at various salinities, temperatures, and one atmosphere total pressure. *American Journal of Science* 283: 780-799.
- Mucci A. et Morse J.W.** (1984) - The solubility of calcite in seawater solutions of various magnesium concentration, $I = 0.697$ m at 25 °C and one atmosphere total pressure. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 48: 815-822.

-N/O-

- Nicolas J., Petit V., Thierry P., Besse A. Longet A.** (2004) – Connaissance hydrogéologique du sous-sol de l'agglomération lyonnaise. Rapport d'étape – Phase 1. BRGM/RP-53569-FR, 158 pages, 29 illustrations, 14 annexes.
- Ntougias S., Ehaliotis C., Papadopoulou K. et Zervakis G.** (2006) - Application of respiration and FDA hydrolysis measurements for estimating microbial activity during composting processes. *Biology and Fertility of Soils* 42: 330-337.
- Olsthoorn T.N.** (1982) - The Clogging of Recharge Wells, Main Subjects, Kiwa communication No. 72, Rijswijk, Netherlands, 136pp.
- Orita M., Suzuki Y., Sekiya T. et Hayashi K.** (1989) - Rapid and sensitive detection of point mutations and DNA polymorphisms using the polymerase chain reaction. *Genomics*, 5(4): 874-879.

-P-

Pahud D. (2002) - Geothermal Energy and Heat Storage. Laboratorio di Energia, Ecologica ed Economia.

Palmer C.D., Blowes D.W., Frind E.O. et Molson J.W. (1992) - Thermal energy storage in an unconfined aquifer: 1. Field Injection Experiment. *Water Resour. Res.* 28: 2845-2856.

Palmer C. D. et Cherry J.A. (1984) - Geochemical reactions associated with low-temperature thermal energy storage in aquifers. *Canadian Geotechnical Journal*, 1984, 21 (3), 475-488, 10.1139/t84-051

Parkhurst D.L. et Appello C.A.J. (1999) - User's Guide to Phreeqc (version 2) - A Computer Program for Speciation, Batch-Reaction, One Dimensional Transport and Inverse Geochemical Calculation USGS Water-Resources Investigations Report 99-4259 312.

Perez-Tejeda P., Yanes C. et Maestre A. (1990) - Solubility of naphthalene in water + alcohol solutions at various temperatures. *Journal of Chemical & Engineering Data* 35: 244-246.

Piantone P., Abdelghafour M., Bartet B., Buchet I., Garciadiaz E., Gobbey A., Domas J., Lambolez-michel L., Martin-midy M., Mazzoli M., Mehu J., Winiarski T. (2000) - Protocole de percolation ascendante : application prénormative dans le cadre de la préparation d'une norme européenne. Etude réalisée dans le cadre de la convention ADEME BRGM 99 74 079, BRGM/RP-50359-FR, août 2000, 220p.

Postma D., Boesen C., Kristiansen H. et Larsen F. (1991) Nitrate Reduction in an Unconfined Sandy Aquifer: Water Chemistry, Reduction Processes, and Geochemical Modeling. *Water Resour. Res.* 27: 2027-2045.

Poulin M. (1988) - Modélisation numérique des échanges hydrauliques et thermiques entre rivière et nappe alluviale. *Rev. Sci. Eau*, 1 (1) : 107-128.

Preston-Mafham J., Boddy L. et Randerson P.F. (2002) - Analysis of microbial community functional diversity using sole-carbon-source utilisation profiles – a critique. *FEMS Microbiology Ecology* 42: 1-14.

-R-

Rahman A. et Agrawal A. (1997) - Reduction of nitrate and nitrite by iron metal: Implications for groundwater remediation. Extended Abstract, presented at Division of Environmental Chemistry, American Chemical Society, San Francisco, CA, 13±17 April.

Ralph D.E. et Stevenson J.M. (1995) - The role of bacteria in well clogging. *Water Research* 29: 365-369.

R-Development-Core-Team (2004) - R: A language and environment for statistical computing. R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria. ISBN 3-900051-07-0, URL. <http://www.R-project.org>.

Reddy K. R. et D'Angelo E. M. (1994) - Soil processes regulating water quality in wetlands. In W. J. Mitsch (Ed.) *Global Wetlands : Old World and New*. Elsevier Science, 309-324.

Reddy M.M. et Wang K.K. (1980) - Crystallization of calcium carbonate in the presence of metal ions: I. Inhibition by magnesium ion at pH 8.8 and 25°C. *Journal of Crystal Growth* 50: 470-480.

Richnow H.H., Annweiler E., Michaelis W. et Meckenstock R.U. (2003) - Microbial in situ degradation of aromatic hydrocarbons in a contaminated aquifer monitored by carbon isotope fractionation. *Journal of Contaminant Hydrology* 65: 101-120.

Rousselot D. (1992) - Lyonnaise des eaux- Dumez- Constitution du dossier de demande d'exploitation de 3 forages sur la commune de St-Cyr –en-Val (Loiret) R34460 CEN 4S/92, 47p.

-S-

Sanner B. (2001) - Some history of shallow geothermal energy use. *Proceedings of UNESCO/IGA International Summer School on Direct Application of Geothermal Energy/International Geothermal Days Germany 2001 (Bad Urach).*

Sassner M., Jensen K.H. et Destouni G. (1994) - Chloride migration in heterogeneous soil: 1. Experimental methodology and results. *Water Resour. Res.* 30: 735-745.

Scheytt T., Mersmann P., Leidig M., Pekdeger A. et Heberer T. (2004) - Transport of Pharmaceutically Active Compounds in Saturated Laboratory Columns. *Ground Water* 42: 767-773.

Schniurer J. et Rosswall T. (1982) - Fluorescein diacetate hydrolysis as a measure of total microbial activity in soil and litter. *Appl. Environ. Microbial.* 43, 1256-1261.

Serpaud B., Al-Shukry R., Casteignau M. et Matejka G. (1994) - Absorption des métaux lourds (Cu, Zn, Cd et Pb) par les sédiments superficiels d'un cours d'eau : rôle du PH, de la température et de la composition du sédiment. *Revue des sciences de l'eau* 7: 343-365.

Shiu W.Y., Wania F., Hung H. et Mackay D. (1997) - Temperature Dependence of Aqueous Solubility of Selected Chlorobenzenes, Polychlorinated Biphenyls, and Dibenzofuran. *Journal of Chemical & Engineering Data* 42: 293-297.

Simpson E. H. (1949) - Measurement of diversity. *Nature* 163(4148): 688.

Sommaruga R. et Conde D. (1997) - Seasonal variability of metabolically active bacterioplankton in the euphotic zone of a hypertrophic lake. *Aquat. Microb. Ecol.*, 13, 241–248.

South Australian Environment Protection Agency (EPA) (2007a) - EPA Guidelines. Regulatory monitoring and testing: water and wastewater sampling. Adelaide.

Sowers L., York K. P. et Stiles L. (2006) - Impact of thermal buildup on groundwater chemistry and aquifer microbes. *Ecstock Conference on Thermal Energy Storage. The Richard Stockton College of New Jersey.*

Stenberg B., Johansson M., Pell M., Sjö Dahl-Svensson K., Stenström J. et Torstensson L. (1998) - Microbial biomass and activities in soil as affected by frozen and cold storage. *Soil Biology and Biochemistry* 30: 393-402.

Stumm W. et Morgan J. J. (1996) - *Aquatic chemistry: chemical equilibria and rates in natural waters.* 3rd ed. New York: Wiley.

Surbeck H. (1996) - A Radon-in-water monitor based on fast gas transfer membranes. *Int. conf. Technologically enhanced natural radioactivity (TENR) caused by non-uranium mining. October 16-19 1996, Szczyrk, Poland.*

-T/U-

Tam N.F.Y. (1998) - Effects of wastewater discharge on microbial populations and enzyme activities in mangrove soils. *Environmental Pollution* 102: 233-242.

Taniguchi M. (1993) - Evaluation of vertical groundwater fluxes and thermal properties of aquifers based on transient temperature-depth profiles. *Water Resour. Res.* 29: 2021-2026.

Taniguchi M., Burnett W. C. et Ness G. D. (2008) - Integrated research on subsurface environments in Asian urban areas *Sci. Total Environ.* **404** 377–92

Taniguchi M., Shimada J., Tanaka T., Kayane I., Sakura Y., Shimano Y., Dapaah-Siakwan S., et Kawashima S. (1999) - Disturbances of temperature-depth profiles due to surface climate change and subsurface water flow: (1) An effect of linear increase in surface temperature caused by global warming and urbanization in the Tokyo metropolitan area, Japan, *Water Resour. Res.*, 35, 1507–1517.

Ten Hulscher T.E.M. et Cornelissen G. (1996) - Effect of temperature on sorption equilibrium and sorption kinetics of organic micropollutants - a review. *Chemosphere* 32: 609-626.

Thamdrup B. et Fleischer S. (1998) - Temperature dependence of oxygen respiration, nitrogen mineralization, and nitrification in Arctic sediments. *Aquatic Microbial Ecology* 15: 191-199.

Thioulouse J., Dufour A.B. et Chessel D. (2004) - Ade4: Analysis of Environmental Data : Exploratory and Euclidean methods in Environmental sciences. R package version 1.3-3. <http://pbil.univ-lyon1.fr/ADE-4>.

Till B.A., Weathers L.J. et Alvarez P.J.J. (1998) - Fe(0)-Supported Autotrophic Denitrification. *Environmental Science & Technology* 32: 634-639.

Trevors J.T., Mayfield C.I. et Inniss W.E. (1982) - Measurement of Electron Transport System (ETS) activity in soil. *Microbial Ecology* 8: 163-168.

Ultee A., Souvatzi N., Maniadi K., König H. (2004) - Identification of the culturable and nonculturable bacterial population in ground water of a municipal water supply in Germany, *Journal of Applied Microbiology* 96(3): 560-568

-V/W-

Van Beek C., Breedveld R., Juhász-Holterman M., Oosterhof A. et Stuyfzand P. (2009) - Cause and prevention of well bore clogging by particles. *Hydrogeology Journal* 17: 1877-1886.

Van Mourick M.G.J., Timmermans M. A., Drijver M. B. C. et Willensen M. A. (2004) - Effects of temperature on groundwater quality, state of the art. Report of the Nederlandse Vereniging voor Ondergrondse Energieropslag funded by the Nederlandse Onderneming voor Energie en Milieu, subcontracting IF Technology.

Washington J.W., Endale D.M., Samarkina L.P. et Chappell K.E. (2004) - Kinetic control of oxidation state at thermodynamically buffered potentials in subsurface waters. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 68: 4831-4842.

Winters A. L. (1992) - Summary of research on microbiological processes. International Energy Agency Subtask D Final report. Pacific Northwest Laboratory – ref. 7980.

Włodarczyk T., Stępniewski W. et Brzezińska M. (2002) - Dehydrogenase activity, redox potential, and emissions of carbon dioxide and nitrous oxide from Cambisols under flooding conditions. *Biology and Fertility of Soils* 36: 200-206.

-Z-

Zheng Z., Aagaard P. et Breedveld G.D. (2002) - Sorption and anaerobic biodegradation of soluble aromatic compounds during groundwater transport. 1. Laboratory column experiments. *Environmental Geology* 41: 922-932.

Zimmerman R., Iturriaga R. et Becker-Birck J. (1978) - Simultaneous determination of the total number of aquatic bacteria and the number thereof involved in respiration. *Appl. Environ. Microbiol.* 36:926-935.

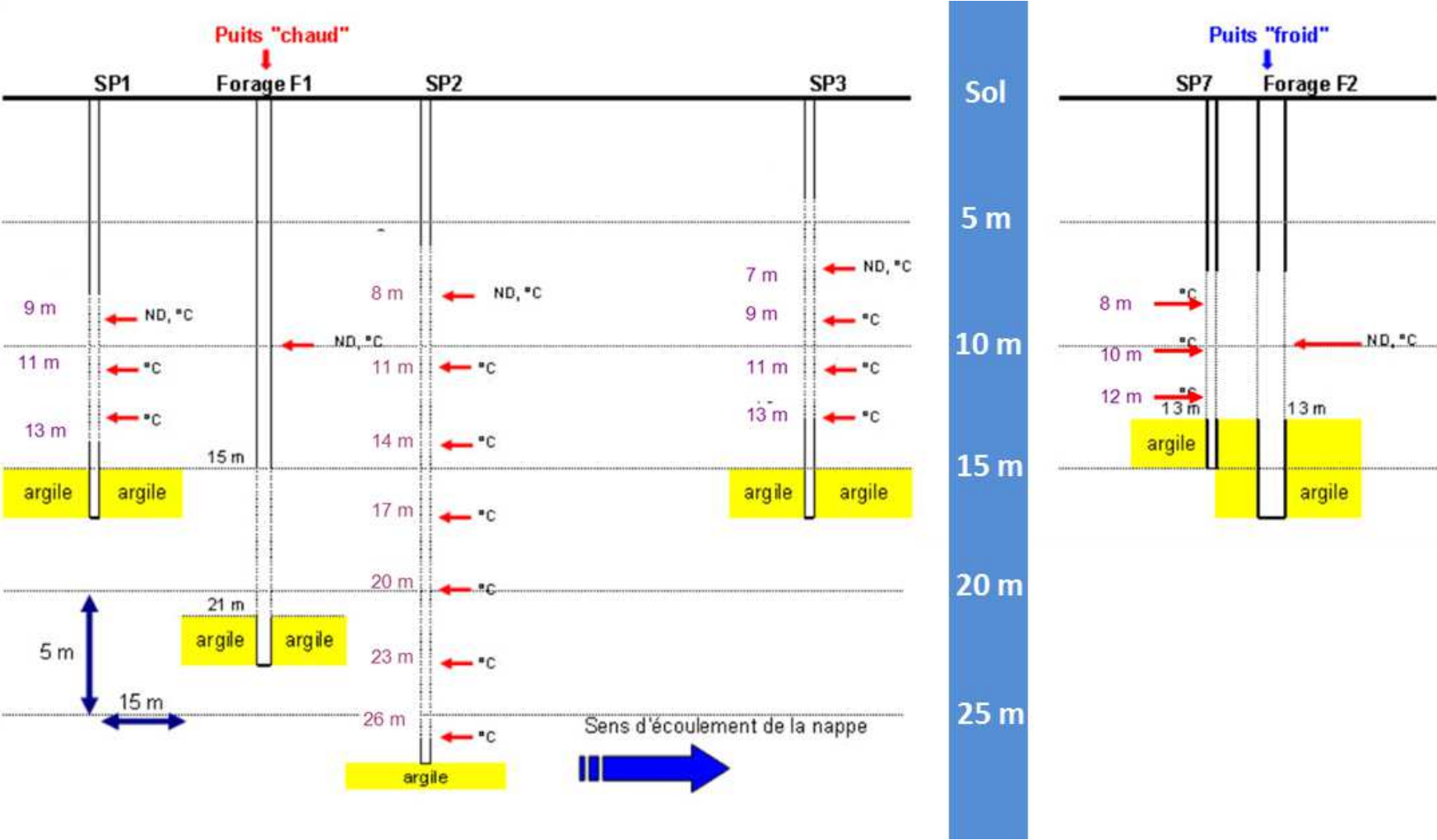
Zwietering M.H., Jongenburger I., Rombouts F.M. et Van 't Riet K. (1990) - Modeling of the Bacterial Growth Curve. *Applied and Environmental Microbiology* 56: 1875-1881.

ANNEXES

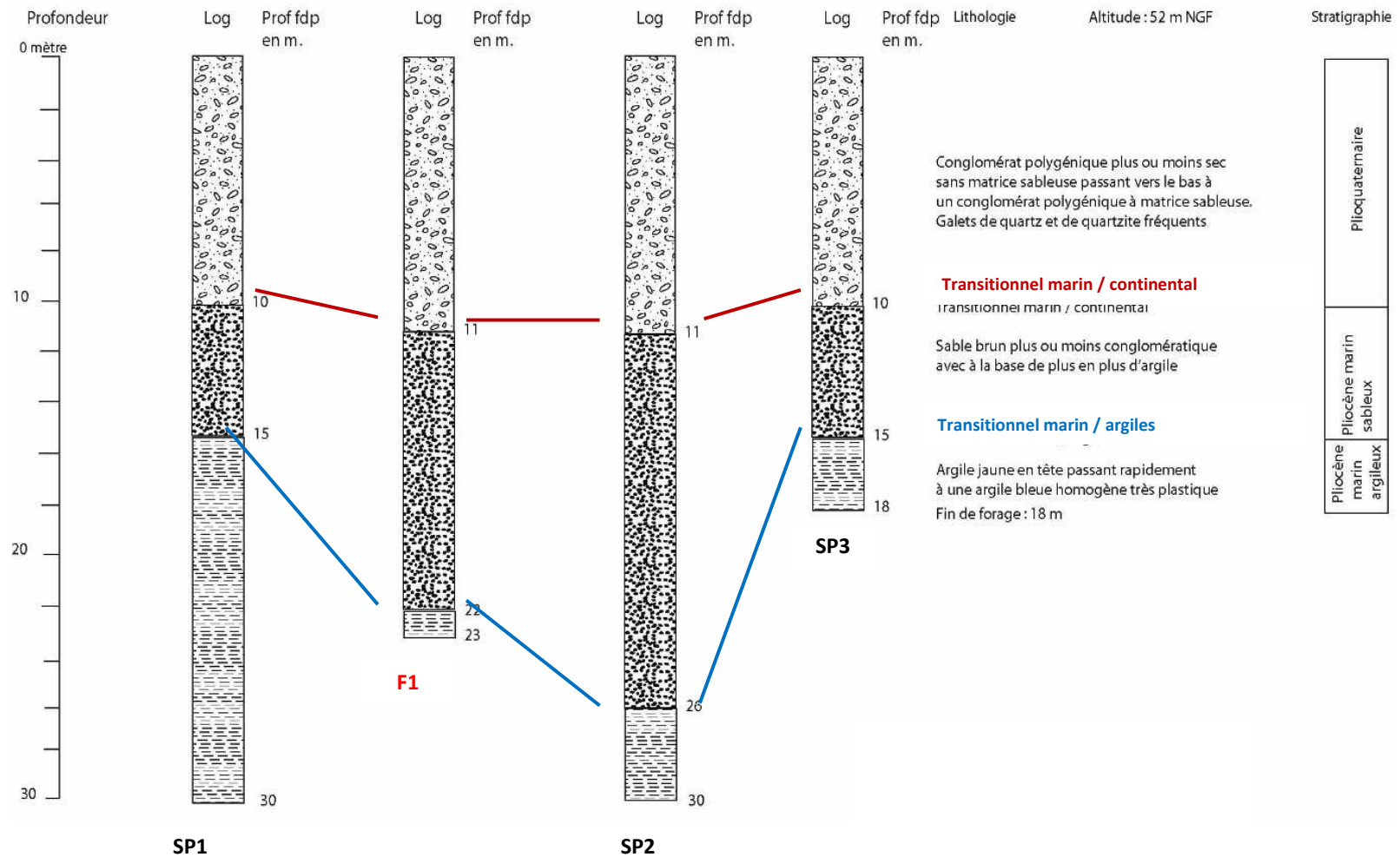
Annexe 1 : Exemples de cas recensés de problèmes d'exploitation

Site (pays)	Nombre d'années d'exploitation / C (Commercial) ou E (Expérimental)	Gamme de Température mise en jeu (°C)		Géologie / Typologie de la nappe	Données chimiques (concentrations en mg/L) pH/Fe/Ca/Cl	Principaux problèmes rencontrés (et Solutions)	Traitements
		Chaud	Froid				
Plaisir (Thiverval - Grignon). France	3 / E	120/80		Niveaux sableux et argileux / Confiné		Colmatage des puits et corrosion provoquée par une aération lors du traitement à la chaux ; Colmatage de l'aquifère due à une dispersion argileuse résultant d'un traitement au Sodium	
Hørsholm (Danemark)	6 / E	100/65	50/70	Sable fluvioglaciaire / Confiné	7,2 / 4 / 80 / 30		Ajout d'acide + dégazage
St. Paul, Minnesota U.S	11	97/39		grès cimentés / Confiné	8 / 2 / 50 / 2	Dépôt de carbonate au niveau de l'échangeur, colmatage de l'aquifère	Echange cationique (Na)
Trappes. France	3 / C	50/25		Sables / Confiné	-- / 160 / -- / 70	Colmatage des puits (ajout d'acide)	ajout de NaCl
Scarborough (Canada)	5 / C	50 / 20	3 / 10	Sable fluvioglaciaire / Confiné	7,8 / 11 / 90 / 3	Dégazage de méthane provoquant un colmatage de l'aquifère ainsi qu'un danger	Aucun
Shanghai, Chine	Quelques années / C	40/20		Sable et gravier quaternaire / Confiné		Corrosion (filtration avant injection)	Utilisation d'eau du robinet
Campugnet. France	1 / E	33/16		Gravelo sableux / Non confiné			Aucun
Montrouil sous bois. France	2 / C	26/20		Sable / Confiné	None	Colmatage puit d'injection induit probablement par migration de particules fines	Aucun
Delft. Netherlands	5 / C	26 / 18	10	Graviers + sables / Confiné	6,7 / 290 / 30 / 1200	Colmatage des puits dus à une exsolution du CH ₄ provoqué par une chute de pression (dégazage avant injection ou conservation de la pression dans le système)	
Bunnik. Netherlands	5 / C	26/18	10	Graviers + sables / Confiné		Léger colmatage dû à des dépôts de fer dans le puit d'injection	
Kristianstad. Suède	4 / C	25 / 22	10 / 16	Sable fluvioglaciaire / Semi-confiné	8 / 0,2 / 80 / 20	Rupture thermique au puit froid	
Lomma. Suède	4 / C	20 / 12	3 / 5	Sable fluvioglaciaire / Confiné	7,3 / 6,5 / 85 / 130	Colmatage des puits de production	
Klippan. Suède	8 / C	17 / 9	5 / 11	Dépôts fluvioglaciaire / Non confiné	8 / 4 / 50 / 40	Colmatage puit chaud par fer	
1st National Cotton Mill, Chanzhou. China	3 / C		16 / 12	Sable fluviatile fins et grossier / Confiné	-- / 0,08 / -- / --	Colmatage à proximité du puits causé par dissolution/précipitation de Fe-Mn	Filtration, Chloration
Aulnay sous bois. France	5 / C	13	7	Sable / Confiné	-- / -- / 0,6 / --	Colmatage puit d'injection causé par une aération et précipitation de fer (imperméabilisation du système et traitement acide)	Aucun
Falun. Sweden	6 / C	14 / 8	2 / 4	Esker / Non confiné	6,8 / 3,5 / 30 / 20	Dépôt de fer sur les échangeurs thermiques	Acidification des puits
SAS Office. Suède	5 / C	15 / 8	2 / 12	Esker / Non confiné	7 / < 0,1 / 170 / 140	Colmatage d'un puit au fer causé par une entrée d'air (système hermétique) ; Fuite causée par une pression excessive	
Sparren. Suède	1	15 / 13	2 / 5	Calcaire / confiné par niveaux argileux	6,9 / 0,5 / 220 / 2000	Corrosion des pompes due à une entrée d'air	
The triangle. Suède	2 / C	15 / 13	2 / 5	Calcaire / confiné par niveaux argileux	7,7 / 0,5 / 170 / 250	Echangeurs de chaleur colmatés par gravier (changement de pompe)	

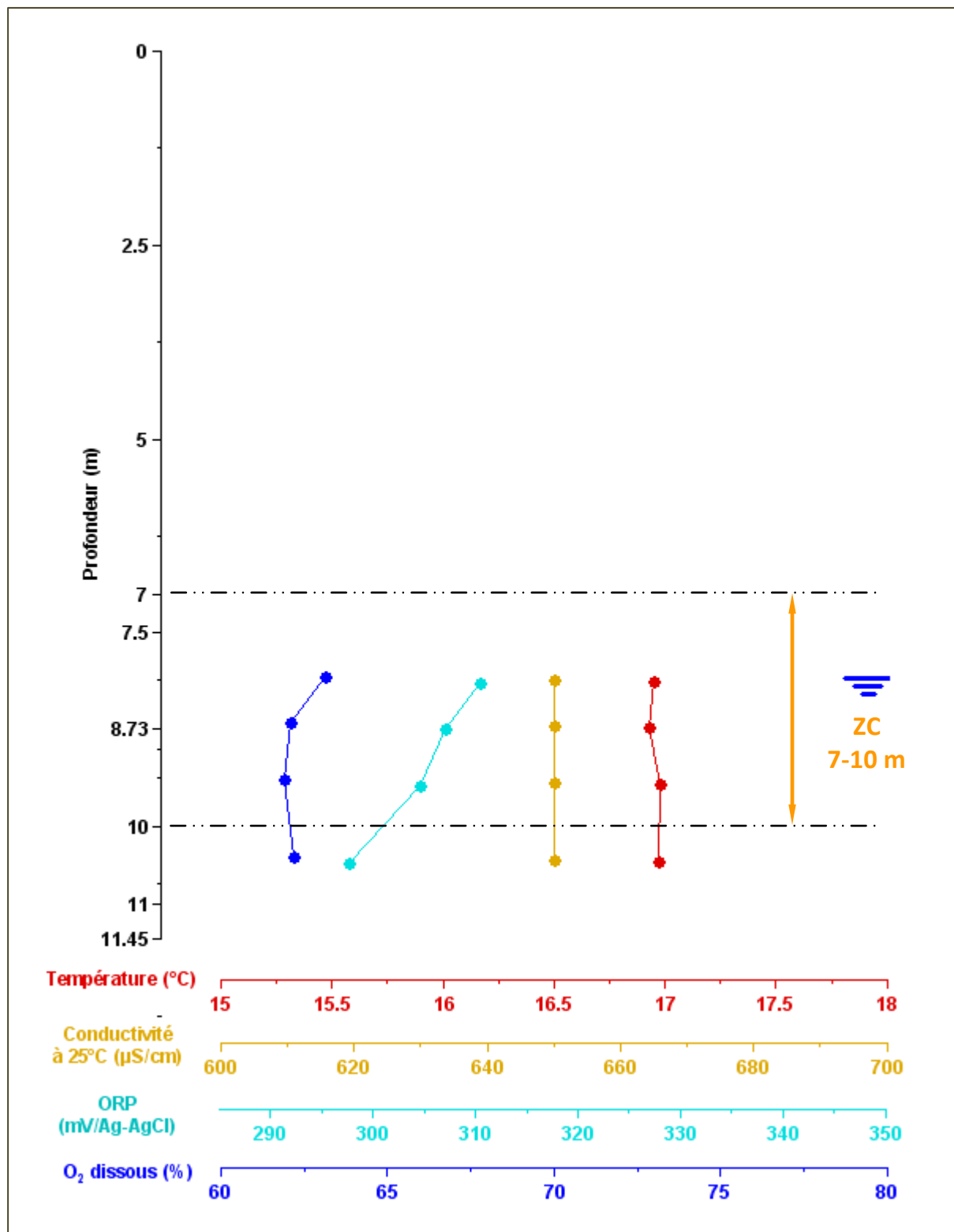
Annexe 2 : Instrumentation en température au niveau de la nappe (site du Ctifl-Balandran)



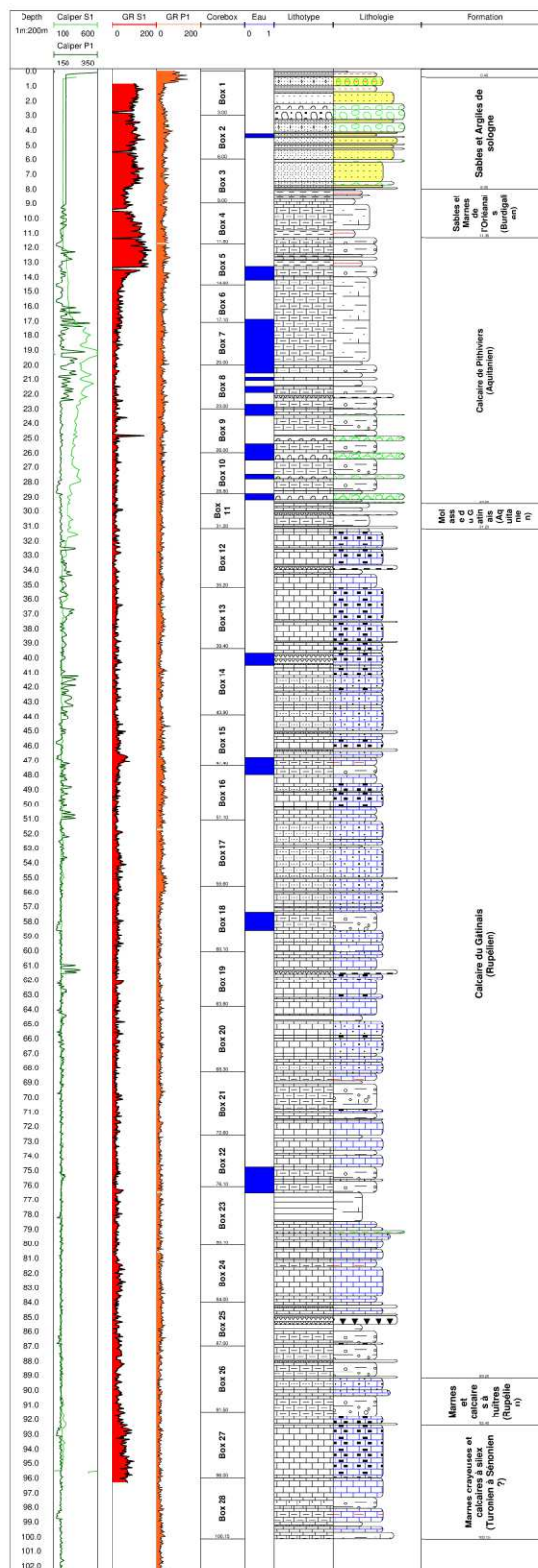
284



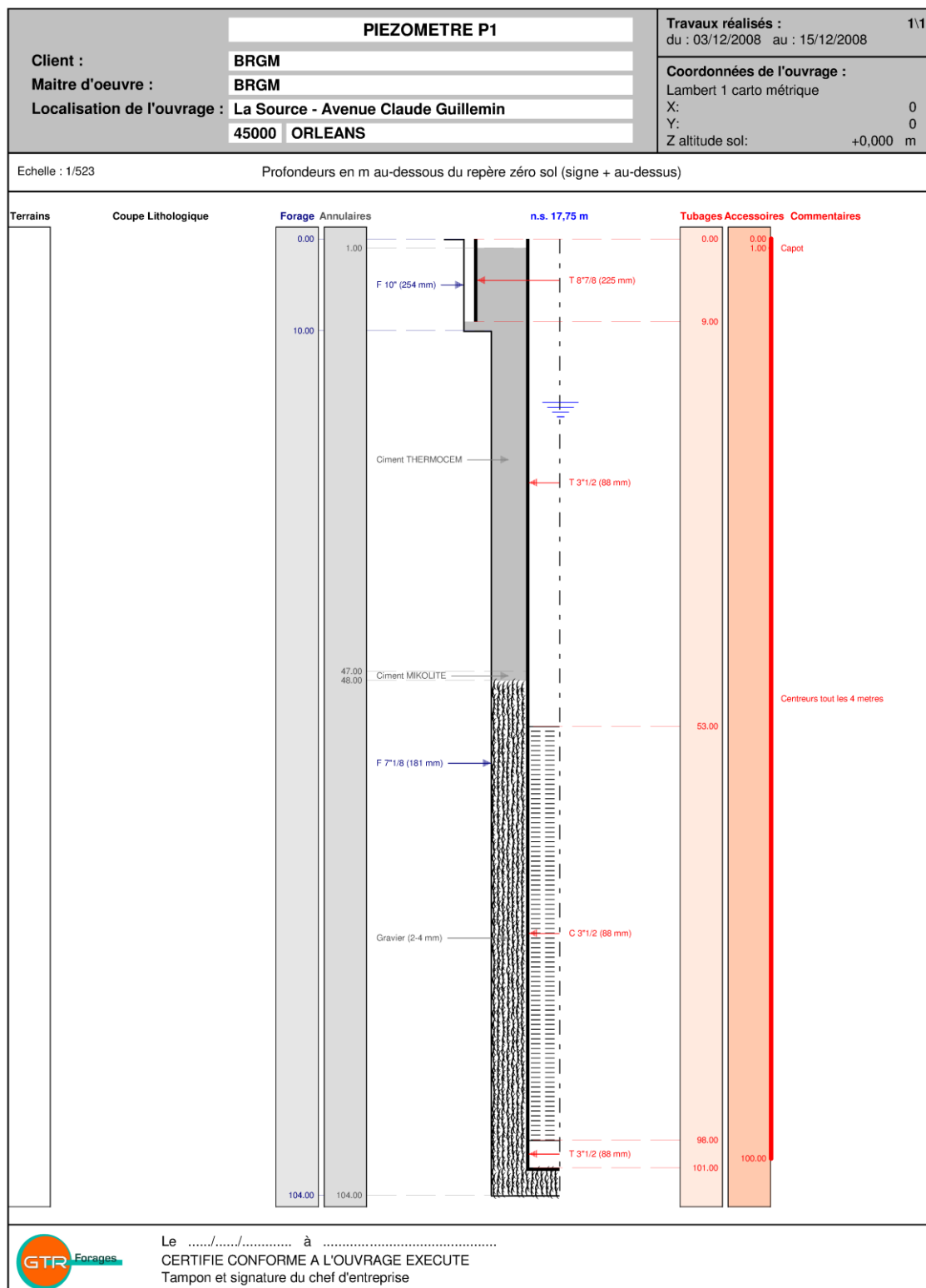
**Annexe 4 : Exemple de diagraphie au niveau du site de la
Mairie du 8^e à Lyon (Piézomètre P3, 16/12/2010)**

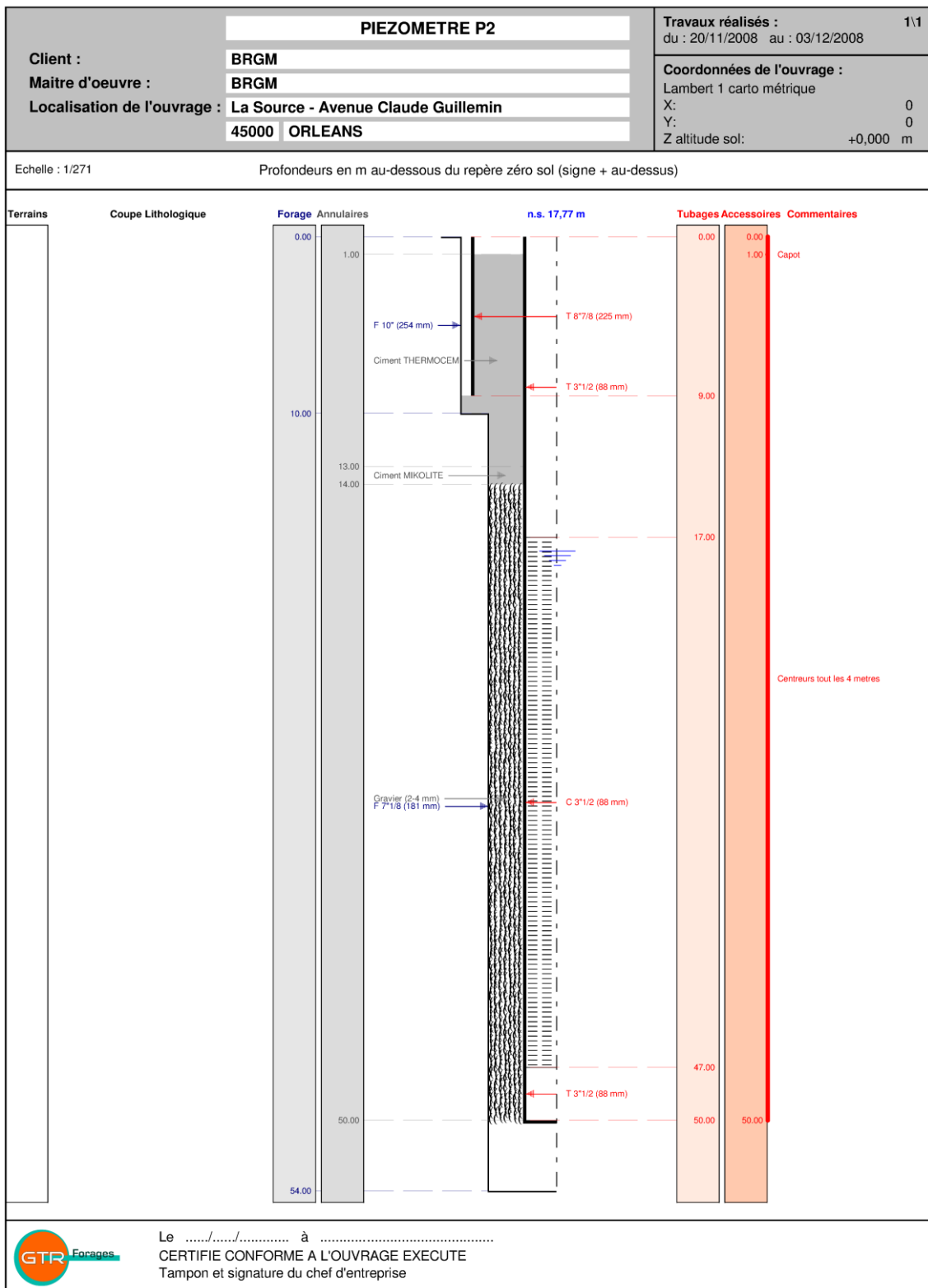


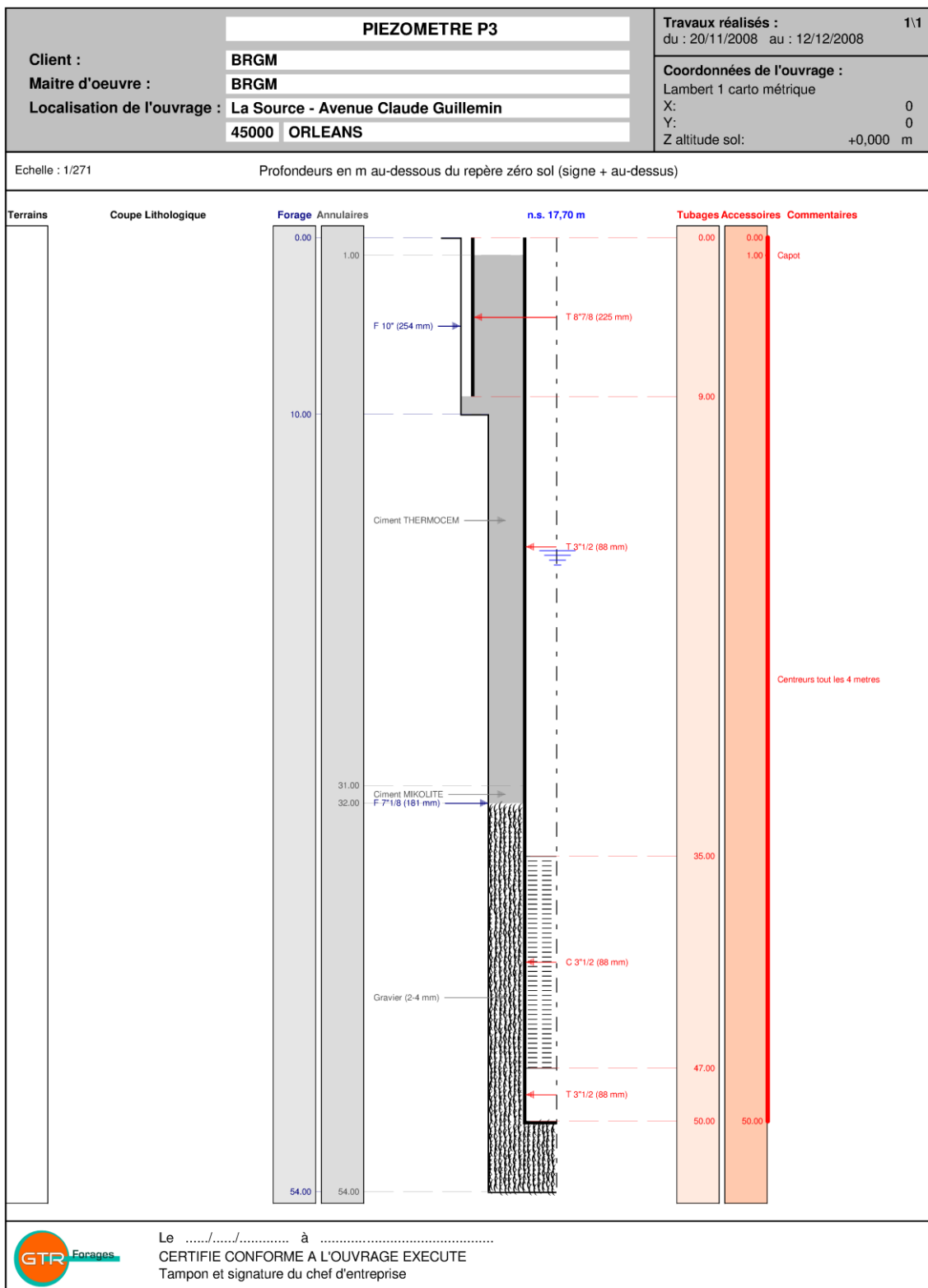
Annexe 5 : Coupe technique détaillée au 1/200ème de la plateforme expérimentale pour les échangeurs géothermiques (site du BRGM)



Annexe 6 : Coupe technique des piézomètres de suivi implantés sur la plateforme expérimentale pour les échangeurs géothermiques (site du BRGM)







Annexe 7 : Caractérisation physico-chimiques initiale du site expérimental du BRGM

	Nappe des calcaires d'Etampes (Piézomètre n°1)	Nappe des calcaires de Pithiviers (Piézomètre n°2)	Nappe des calcaires de Pithiviers (Piézomètre n°3)
Paramètres physico-chimiques			
pH	7.47	7.47	7.47
Température	15.1	14	13.9
Conductivité à 25 °C ($\mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$)	420	433	430
O ₂ dissout ($\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$ / %sat)	0.09 0.9	0.11 1.1	0.03 0.3
Eh (mV/ENH)	219.2	371.91	352.15
Pe	3.83	6.53	6.18
Equilibre calco-carbonique			
TH	18.61	18.80	19.06
Alcalinité Commentaires °F mEq/l ¹	dureté moyenne 19.6 3.92	dureté moyenne 20.15 4.03	dureté moyenne 20.3 4.06
Composition cationique et silice	mg.l⁻¹ mmol.L⁻¹	mg.l⁻¹ mmol.L⁻¹	mg.l⁻¹ mmol.L⁻¹
Ca ²⁺	66.1 1.649	68.7 1.714	69.4 1.732
Na ⁺	10.4 4.524E-01	10.8 4.698E-01	11 4.785E-01
Mg ²⁺	5 2.057E-01	3.9 1.605E-01	4.1 1.687E-01
K ⁺	3.1 7.929E-02	3.1 7.929E-02	3.1 7.929E-02
NH ₄ ⁺	0.05 2.777E-06	< LQ (0.05mg.l ⁻¹)	< LQ (0.05mg.l ⁻¹)
Fe ²⁺	< LQ (0.02mg.l ⁻¹)	< LQ (0.02mg.l ⁻¹)	< LQ (0.02mg.l ⁻¹)
Mn ²⁺ ($\mu\text{g/l}$)	82.3 1.498E-03	93.2 1.696E-03	100.9 1.84E-03
Al ³⁺ ($\mu\text{g/l}$)	< LQ (1 $\mu\text{g.l}^{-1}$)	< LQ (1 $\mu\text{g.l}^{-1}$)	< LQ (1 $\mu\text{g.l}^{-1}$)
Ba ²⁺ ($\mu\text{g/l}$)	192 1.398E-03	153 1.114E-03	141 1.03E-03
B ³⁺ ($\mu\text{g/l}$)	14.69 1.359E-03	9.04 8.362E-04	10.24 9.47E-04
Sr ²⁺ ($\mu\text{g/l}$)	211 2.409E-03	189 3.440E-03	180 3.28E-03
SiO ₂ (ss)	30.4 5.060E-01	32.8 5.460E-01	33.3 5.543E-01
Composition anionique	mg.l⁻¹ mmol.kgH₂O⁻¹	mg.l⁻¹ mmol.kgH₂O⁻¹	mg.l⁻¹ mmol.kgH₂O⁻¹
Cl ⁻	20.1 5.669E-01	19.6 5.528E-01	19.7 5.557E-04
NO ₃ ⁻	0.5 8.064E-03	1.9 3.064E-02	1.6 2.580E-05
NO ₂ ⁻	< LQ (0.01mg.l ⁻¹)	0.02 4.348E-07	0.03 6.521E-04
SO ₄ ²⁻	5.4 5.621E-02	4 4.164E-02	4.2 4.372E-02
F ⁻	0.2 1.053E-02	< LQ (0.01mg.l ⁻¹)	< LQ (0.1mg.l ⁻¹)
Br ⁻	< LQ (0.1mg.l ⁻¹)	< LQ (0.1mg.l ⁻¹)	< LQ (0.1mg.l ⁻¹)
OrthoPhosphate (PO ₄)	< LQ (0.1mg.l ⁻¹)	< LQ (0.1mg.l ⁻¹)	< LQ (0.1mg.l ⁻¹)
Carbone Organique Total	0.6	< LQ (0.5mg.l ⁻¹)	0.6

Frédéric GARNIER

Contribution à l'évaluation biogéochimique des impacts liés à l'exploitation géothermique des aquifères superficiels : Expérimentations et simulations à l'échelle d'un pilote et d'installations réelles

Résumé : Pour la climatisation de bâtiments ou d'installations industrielles, les nappes d'eaux superficielles représentent une source de frigorifiques très convoitée. Leurs exploitations intensives depuis plusieurs dizaines d'années conjuguées au redéploiement de la filière géothermique ces dernières années, soulèvent des préoccupations quant à la préservation des ressources en eau.

Dans ce contexte, la présente étude vise à évaluer l'impact de variations locales de température sur la qualité physico-chimique et microbiologique des eaux souterraines sur la base (i) de suivis in-situ au niveau de 3 installations réelles exploitant les nappes d'eaux superficielles et, (ii) d'expérimentations sur un pilote (BIOTHERMEX) permettant de reproduire, en conditions parfaitement maîtrisées, l'effet de la propagation d'un panache thermique dans un modèle réduit d'aquifère.

Dans la gamme de température relevée sur site, les principaux résultats obtenus montrent que les impacts thermiques sont circonscrits au voisinage immédiat de l'installation, pouvant altérer jusqu'à plus d'une dizaine de degrés la sténothermie des nappes. Le suivi des paramètres physico-chimiques n'ont pas fait apparaître de perturbations significatives sur la période de surveillance, constat étayé par des modélisations hydrogéochimiques. En revanche, une influence significative a été relevée au niveau des principaux descripteurs microbiologiques (activité, diversité de la microflore totale).

Enfin, les expériences menées à l'échelle du laboratoire ont permis d'appréhender finement le comportement réactionnel du système et de définir une température de réinjection critique, au-delà de laquelle des désordres potentiels sont attendus.

Mots clés : Eau souterraine, Pompes à chaleur géothermique, Communauté bactérienne, Hydrogéochimie

Contribution to the biogeochemical evaluation of the impacts related to the geothermic exploitation of the near-surface aquifers: Experiments and simulations on a pilot and real installation scale

Summary: The use of shallow groundwater as heat source for heat pump is very coveted for air-conditioning of building or industrial facilities. Their intensive use during many years combined with the redeployment of the geothermal industry these last years, raise concerns about the safeguarding of the water resources.

In such a context, the present study aims to evaluate the impact of local variations of temperature on the physicochemical and microbiological quality of groundwater systems on the basis of (I) field investigation and, (II) experiments on a pilot (named BIOTHERMEX) making it possible to reproduce, in perfectly supervised conditions, the effect of the propagation of a thermal plume in a reduced aquifer model.

Within the temperature recorded on site, principal outcomes showed that thermal impacts are confined in the immediate vicinity of the installation, and were able to deteriorate, up to about ten degrees, the stenothermy of the groundwater systems. The evolution of the physicochemical parameters did not reveal any significant disturbances over the monitoring period, this being also predicted by hydrogeochemical modeling. On the other hand, a significant influence was raised about some microbiological indicators-descriptors (namely activity, diversity of the total microflora).

Lastly, the experiments undertaken on the laboratory scale made it possible to finely apprehend the reactional behavior of the system and to define a critical temperature of re-injection beyond which, potential disorders are expected.

Keywords: Groundwater, Geothermal Heat Pumps, Bacterial community, Hydrogeochemistry



BRGM, 3 Avenue Claude Guillemin, BP 36009, 45060 Orléans Cedex 2

Institut des Sciences de la Terre d'Orléans, 1A rue de la Férolerie 45071 Orléans Cedex